

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**KATMANLI FERROELEKTRİK $TiGaSe_2$
KRİSTALİNİN YÜKSEK SICAKLIKLARDA
İLETKENLİK MEKANİZMASININ İNCELENMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

FATMA AZAK

Enstitü Anabilim Dalı : FİZİK
Tez Danışmanı : Yrd. Doç. Dr. Erdoğan ŞENTÜRK

Haziran 2008

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

KATMANLI FERROELEKTRİK $TiGaSe_2$
KRİSTALİNİN YÜKSEK SICAKLIKLARDA
İLETKENLİK MEKANİZMASININ İNCELENMESİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

FATMA AZAK


Enstitü Anabilim Dalı : FİZİK

Bu tez 06/06/2008 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oybirliği ile kabul edilmiştir.

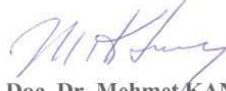
Yrd. Doç. Dr. Erdoğan ŞENTÜRK
Jüri Başkanı



Yrd. Doç. Dr. Ali ÇORUH
Üye



Doç. Dr. Mehmet KANDAZ
Üye



TEŐEKKÜR

Öğrenimim ve tez çalışmam süresince bilgisini, tecrübesini, ilgi ve desteğini hiç bir zaman eksik etmeyen ve her konuda bana yardımcı olan değerli hocam Yrd. Doç. Dr. Erdoğan ŐENTÜRK'e sonsuz teşekkür ederim.

Hayatımın her aşamasında benden maddi ve manevi desteğini hiçbir zaman esirgemeyen aileme sonsuz saygı ve Őükranlarımı sunarım.

İÇİNDEKİLER

TEŞEKKÜR.....	ii
İÇİNDEKİLER.....	iii
SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ.....	v
ŞEKİLLER LİSTESİ.....	viii
TABLolar LİSTESİ.....	x
ÖZET.....	xi
SUMMARY.....	xii
BÖLÜM 1.	
GİRİŞ.....	1
BÖLÜM 2.	
DENEYSEL ÇALIŞMALAR.....	2
2.1. Yapısal Çalışmalar.....	3
2.1.1. X-Işını çalışması.....	3
2.1.2. Nötron saçılması.....	4
2.2. Optik Ölçümler.....	4
2.2.1. Raman çalışması.....	4
2.2.2. NMR çalışması.....	6
2.3. Kalorimetrik Ölçümler.....	7
2.4. Dielektrik Ölçümler.....	8
2.4.1. TlGaSe ₂ kristalinin sıcaklığa bağlılığı.....	8
2.4.2. TlGaSe ₂ kristalinin farklı frekanslarda sıcaklığa bağlılığı.....	10
BÖLÜM 3.	
DENEYSEL AYRINTILAR.....	13

3.1. TlGaSe ₂ Kristal Yapısı.....	13
3.2. Dielektrik Ölçümler	14
BÖLÜM 4.	
TEORİK TEMELLER.....	18
4.1. Klasik Sıçrama Modeli.....	18
4.1.1. Atomik sıçrama (AH).....	18
4.2.2. Enerji bariyeri ile özdeşleşmiş sıçrama modeli	20
4.2. Dielektrik Durulma.....	26
4.3. Elektrokimyasal Empedans Spektroskopisi	29
4.3.1. Elektrokimyasal empedans kavramı.....	29
BÖLÜM 5.	
DENEYSEL SONUÇLAR.....	34
5.1. TlGaSe ₂ Kristalinin Empedans Analizi.....	34
5.1.1. Empedansın reel kısmının sıcaklık bağımlılığı.....	34
5.1.2. Empedansın imajiner kısmının sıcaklık bağımlılığı.....	35
5.1.3. Empedansın reel kısmının frekans bağımlılığı.....	36
5.1.4. Empedansın imajiner kısmının frekans bağımlılığı.....	37
5.1.5. Empedansın reel kısmının imajiner kısmına bağlılığı.....	38
5.2. TlGaSe ₂ Kristalinin İletkenlik Çalışması.....	41
5.2.1. A.C. iletkenliğin frekansa bağlılığı.....	41
5.2.1.1. Kuantum mekanik tünelleme modeli.....	43
5.2.1.2. Enerji bariyeri ile özdeşleşmiş sıçrama modeli.....	43
BÖLÜM 6.	
SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	47
KAYNAKLAR.....	49
ÖZGEÇMİŞ.....	52

SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ

A	: Numunenin kesit alanı
A(T)	: Genlik
AH	: Atomic Hopping
a.c.	: Alternatif akım
α	: Durulma parametresi
α_1	: Ortalama kutuplanabilirlik
C_x	: Malzemenin kapasitansı
C_0	: Boşluğun kapasitansı
C_{2h}^6	: Uzay grubu
CBH	: Correlated Barrier Hopping
d	: Numunenin kalınlığı
d.c.	: Doğru akım
e	: Elektron yükü
ϵ	: Effektif dielektrik sabit
ϵ^*	: Kompleks dielektrik sabit
ϵ'	: Dielektrik sabitin reel kısmı
ϵ''	: Dielektrik sabitin imajiner kısmı
ϵ_0	: Boşluğun dielektrik sabiti
ϵ_∞	: Yüksek frekansta dielektrik sabit
E(t)	: Zamana bağlı potansiyel
E_0	: Sinyal büyüklüğü
f_r	: Durulma frekansı
Ga	: Galyum
I(t)	: Zamana bağlı akım

I_0	: Akım genliđi
k_B	: Boltzman sabiti
n	: Sıçrayan elektronların sayısı
N, N_p	: Elektron konsantrasyonu
NMR	: Nükleer Magnetik Rezonans
$P(W)$: Elektron dağılım olasılığı
q_c	: Oranlı durumda dalga vektörü
q_{inc}	: Oransız durumda dalga vektörü
QMT	: Quantum Mechanical Tunneling
R	: Direnç
R_H	: Sıçrama mesafesi
R_x	: Isı kaybı
s	: Üstel iletkenlik parametresi
Se	: Selenyum
T	: Sıcaklık
Tl	: Talyum
T_i	: Oransız faz geçiş sıcaklığı
T_c	: Oranlı faz geçiş sıcaklığı
τ	: Durulma zamanı
τ_0	: Karakteristik durulma zamanı
ω	: Açısal frekans
VRH	: Variable Range Hopping
W_0	: Başlangıç sıçrama yüksekliđi
W_H	: Sıçrama yüksekliđi
Z^*	: Kompleks empedans
Z'	: Empedansın reel kısmı
Z''	: Empedansın imajiner kısmı
$\sigma(\omega, T)$: Toplam iletkenlik

- σ_{ac} : A.C. iletkenlik
- σ_{dc} : D.C. iletkenlik
- ξ : Sıcaklığa ve sıçrama yüksekliğine bağlı parametre
- δ : Oransızlık parametresi

ŞEKİLLER LİSTESİ

Şekil 2.1.	TlGaSe2 katmanlı kristalinin X-ışını kırınımı.....	4
Şekil 2.2.	TlGaSe2 katmanlı kristalinin T=50 K ve 320 K de Raman spektroskopisi.....	5
Şekil 2.3.	TlGaSe2 kristalinin farklı sıcaklıkta ⁶⁹ Ga atomunun NMR spektroskopisi.....	6
Şekil 2.4.	TlGaSe2 kristalinin farklı sıcaklıkta ⁷¹ Ga atomunun NMR spektroskopisi.....	7
Şekil 2.5.	TlGaSe2 kristalinin ısı kapasitesinin sıcaklıkla değişimi.....	8
Şekil 2.6.	TlGaSe2 kristalinin dielektrik sabitinin sıcaklıkla değişimi.....	9
Şekil 2.7.	Zayıf ferroelektrik faz geçişi ile TlGaSe2 'nin dielektrik sabitinin reel kısmının sıcaklığa bağlılığı.....	10
Şekil 2.8.	Oransız faz geçişi ile TlGaSe2'nin dielektrik sabitinin reel kısmının sıcaklığa bağlılığı.....	10
Şekil 2.9.	TlGaSe2'nin dielektrik sabitinin reel kısmının farklı frekanslarda sıcaklığa bağlılığı.....	11
Şekil 2.10.	TlGaSe2'nin dielektrik sabitinin imajiner kısmının farklı frekanslarda sıcaklığa bağlılığı.....	12
Şekil 3.1.	TlGaSe2 kristalinin yapısı.....	14
Şekil 3.2.	Devre şeması.....	15
Şekil 3.3.	Dielektrik spektroskopi deney düzeneği.....	17
Şekil 4.1.	Bariyer üzerindeki klasik sıçrama. W bariyer yüksekliği, R seviyeler arası mesafe, Δ seviyeler arası enerji farkı.....	19
Şekil 4.2.	R mesafesindeki bir taşıyıcının deneyle bağdaşmış potansiyeli...	20
Şekil 4.3.	Farklı frekansta durulma ve rezonans tiplerinin şematik gösterimi.....	27
Şekil 4.4.	Lineer bir sistemde sinüsoidal akım cevabı.....	30

Şekil 4.5.	Gerçek Lissajous eğrisi.....	31
Şekil 4.6.	Empedansın reel kısmının imajiner kısmına bağlılığı.....	32
Şekil 4.7.	Tek zaman sabitine eşdeğer basit devre.....	33
Şekil 4.8.	Tek zaman sabitli devrenin beklenen yanıt grafiği.....	33
Şekil 5.1.	TlGaSe ₂ kristalinin empedansın reel kısmının sıcaklığa bağlılığı.	35
Şekil 5.2.	TlGaSe ₂ kristalinin empedansın imajiner kısmının sıcaklığa bağlılığı.....	35
Şekil 5.3.	TlGaSe ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda empedansın reel kısmının frekansa bağlılığı.....	37
Şekil 5.4.	TlGaSe ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda empedansın imajiner kısmının frekansa bağlılığı.....	38
Şekil 5.5.	TlGaSe ₂ kristalinin reel kısmının imajiner kısmına bağlılığı.....	39
Şekil 5.6.	Durulma zamanının sıcaklıkla değişimi.....	40
Şekil 5.7.	TlGaSe ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda a.c iletkenliğinin frekansa bağlılığı.....	42
Şekil 5.8.	TlGaSe ₂ kristalinin s parametresinin sıcaklığa bağlılığı.....	43
Şekil 5.9.	TlGaSe ₂ kristalinin $(1-s) - (6k_B T)$ değişimi.....	45
Şekil 5.10.	TlGaSe ₂ kristalinin sıçrama mesafesinin sıcaklıkla değişimi.....	46

TABLULAR LİSTESİ

Tablo 3.1.	TlGaSe ₂ katmanlı kristalinin örgü sabitleri ve eksenler arasındaki açılar.....	13
Tablo 5.1.	Farklı sıcaklıklarda ölçülen s değerleri.....	42
Tablo 5.2.	TlGaSe ₂ kristalinin farklı sıcaklık ve frekansta sıçrama mesafesi ölçüm sonuçları.....	46

ÖZET

Anahtar kelimeler: Kompleks Empedans, durulma zamanı, sıçrama yüksekliği, sıçrama mesafesi

Bu çalışma, TlGaSe₂ kristalinin yüksek sıcaklıkta iletkenlik ve durulma mekanizmasının incelenmesini kapsamaktadır.

Ferroelektrik TlGaSe₂ kristalinin empedansının reel ve imajiner kısımlarının sıcaklığa ve frekansa bağlılığı incelenmiştir. Ölçümler 298–468 K ile 100 Hz–80 kHz aralığında ve empedans spektroskopisi yöntemi ile gerçekleştirilmiştir. Malzemenin durulma olaylarının gerçekleştiği sıcaklıklar tayin edilmiştir. Bunun yanı sıra aynı sıcaklık ve frekans aralığında iletkenlik mekanizması incelenmiş ve iletkenlik davranışı CBH modeli ile açıklanmıştır.

Son olarak, elde ettiğimiz deneysel veriler teorik formülasyonlara fit edilmiş ve bu fit işlemleri sonunda sıcaklığa bağlı durulma zamanı, sıçrama yüksekliği ve sıçrama mesafesi hesaplanmıştır.

THE INVESTIGATION OF CONDUCTIVITY MECHANISM OF LAYERED FERROELECTRIC TlGaSe_2 CRYSTAL AT HIGH TEMPERATURE

SUMMARY

Key Words: Complex Impedance, Relaxation time, Hopping height, Hopping distance

In this work, relaxation and conductivity mechanism of layered ferroelectric TlGaSe_2 crystal investigated at high temperature.

The measurements of the frequency and temperature dependence of real and imaginary part of impedance for ferroelectric TlGaSe_2 were carried out at the temperature range 298–468 K and frequency range 100 Hz- 80 kHz. In this frequency and temperature interval, the conductivity mechanism of material has been explained with CBH model.

Finally, the data getting from experimental were fitted to the theory and the temperature dependence of the relaxation time, hopping height and hopping distance were calculated.

BÖLÜM 1. GİRİŞ

Ferroelektrik malzemeler 1935 yılında fark edilmiş ve 1945 yılına kadar üzerinde çalışılan tek basit yapılı ferroelektrik kristal BaTiO_3 ' dir [1].

Bir ferroelektrik malzeme, bir dış elektriksel alan olmadığında bile elektriksel dipol momente sahiptir. Doğadaki malzemelerin bazıları ferroelektrik özellik gösterir. Ferroelektriklik genellikle faz geçiş sıcaklığı denilen özel bir sıcaklıkla ortaya çıkar veya kaybolur. Bu malzemelerin geçiş sıcaklığından önceki sıcaklıklardaki yapısı ile geçiş sıcaklığı sonrasındaki yapısı aynı değildir ve geçiş sıcaklığı civarında önemli fiziksel değişimler gözlenmiştir. Kalıcı polarizasyonun oluşumuyla sonuçlanan ferroelektriklik ve faz geçişleri pratik açıdan ilgi çekici özellikler göstermektedir. Ferroelektrik malzemeler optoelektronik aletlerde, modülatörlerde, kızılötesi çeviricilerde, hafıza elemanları ve yansıtmasız kaplama sistemlerinde sıkça kullanılmaktadır [2–4]. Bu uygulamalara karar verilmesi açısından daha detaylı fiziksel çalışmalara ihtiyaç duyulmuştur

Katmanlı yapıdaki TlGaSe_2 ferroelektrik kristallerden biridir. TlGaSe_2 katmanlı kristali ilk kez 1963 sentezlenmiş ve uzun yıllar yarıiletken olarak incelenmiştir [5]. Bu kristalin ferroelektrik özelliklerinin incelenmesine 1980'li yıllarda ve dielektrik özelliklerin incelenmesine ise 1983'lü yıllarda başlanmıştır [9–12]. Aynı zamanda 1980'li yıllarda ferroelektrik kristallerin oransız faz içindeki en çok yapılan araştırmaları hafıza etkisi üzerinedir [9–12]. Son 15 yıl içinde bu kristal 100–300 K sıcaklıkları arasında ardışık ferroelektrik faz geçişleri ortaya koyması bakımından büyük ilgi uyandırmıştır. Günümüze kadar birçok fiziksel özelliği çeşitli deneysel tekniklerle incelenen kristalin halen bilinmeyen fiziksel özellikleri olmakla beraber bilinip de tam olarak açıklanamayan birçok davranışı da mevcuttur [1].

Üç katmanlı kalgojen yapıya sahip olan TlGaSe_2 kristali ferroelektrik ve yarıiletken özellikleri bir arada bulundurması ve yapısal faz geçişine uğramasından dolayı üzerindeki çalışmalar son zamanlarda yoğunlaşmıştır. Faz geçişi sırasında ortaya çıkan diğer özellikleriyle de dikkatleri üstüne çekmiştir. TlGaSe_2 kristalinin safsızlık ve kusur durumları ve onların faz geçişi üzerindeki etkisi, ardışık olarak oransız ve oranlı faz geçişi ortaya koyması bunlardan bazılarıdır. Aynı zamanda dielektrik, elastik, termodinamik, optik, mekanik, kristalografik özellikleri araştırılmaktadır. Son yıllarda Tl tabanlı benzer yapılarla ilgili çalışmalar sıkça göze çarpmaktadır [6–8]. Halen, oda sıcaklığının üzerinde bu malzemenin elektriksel özelliklerini kapsayan detaylı bir çalışma literatürde mevcut değildir. Bu sebeple bu çalışmada, katmanlı TlGaSe_2 kristalinin 298–468 K sıcaklıklarda ortaya koyduğu yüksek sıcaklık faz geçişi, iletkenlik mekanizması ve durulma olayları incelenmesi tercih edilmiştir.

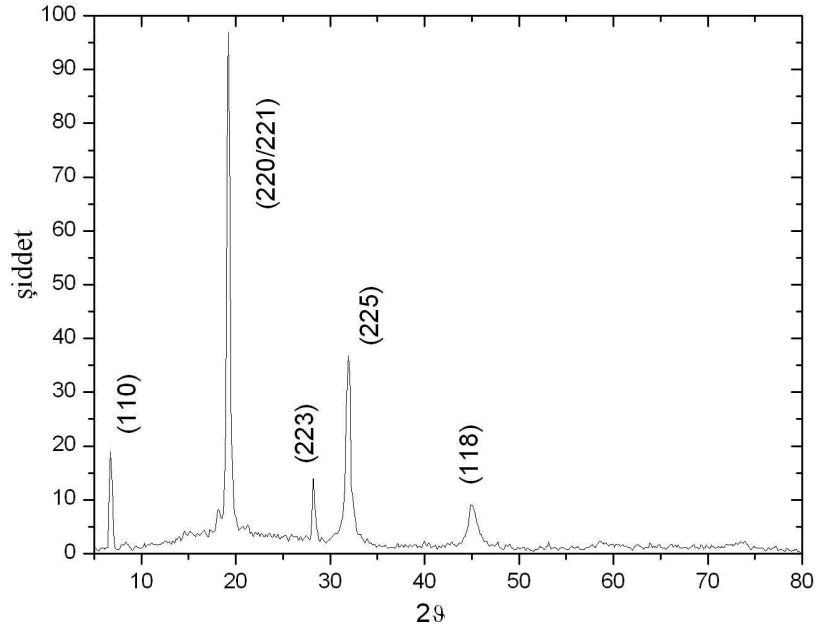
BÖLÜM 2. LİTERATÜRDEKİ İLGİLİ DENEYSEL ÇALIŞMALAR

2.1 Yapısal Çalışmalar

2.1.1 X-Işını çalışması

TlGaSe₂ kristali için X-ışını analizi; yüksek simetrlili TlGaSe₂ kristalinin C_{2h}⁶ uzay simetri grubuna uyduğunu ve bu kristalinin oransız faz geçişinin T_i ≈ 120 K de, oranlı faz geçişinin ise T_c=110 K sıcaklığı arasında meydana geldiğini ortaya koymuştur. Bu kristal için dalga vektöründeki değişim $\vec{q}_{inc}=(\delta,0,0.25)$ kadardır. Burada ki oransızlık parametresi $\delta \approx 0.04$ kadar değişim göstermiştir [13,14]. Bu kristalin temel hücresi oranlı faz içinde dört kat artmıştır ki bu improper ferroelektrikler için tamamen karakteristik bir özelliktir. Bu çalışmalar monoklinik yapıda farklı politipteki kristallerin varlığını ortaya koyarlar. Ayrıca oransız fazda dielektrik sabitin değeri kristalin politip ve safsızlık konsantrasyonuna da bağlıdır [14].

Düşük sıcaklıklarda ise TlGaSe₂'nin değişik fiziksel özelliklerinin detaylı araştırmaları, optiksel absorpsiyon, ısı kapasitesi ve akustik emisyon, 101–103 K ve 246–253 K sıcaklıkları arasında ardışık faz geçişi ortaya koyduğunu göstermiştir. TlGaSe₂ kristali için oda sıcaklığında X-ışını çalışması Şekil 2.1'de gösterilmiştir [29].



Şekil 2.1. TlGaSe₂ katmanlı kristalinin X-ışını kırınımı

2.1.2. Nötron saçılması

Son zamanlarda TlGaSe₂ nin tek kristal nötron saçılması çalışmaları (Kashida et al.) değişen dalga vektörü ile birlikte ($\vec{q}_{inc}=(\delta,0,0.25)$, $\delta \approx 0.04$) 107 ve 118 K arasında bir oransız durumunun varlığını göstermiştir. Düşük sıcaklıktaki fazda ($T < 107$ K), extra yansımalar oranlı durumda $q_c=(0,0,\pm 0.025)$ ortaya çıkarmıştır. Ek olarak nötron saçılması deneylerinde yumuşak modun incelenmesinden ve Brillouin bölgesinin neresinde yumuşadığından hareketle faz geçişlerinin varlığı ve tipi şeklinden bir yorum getirmek mümkündür.

2.2. Optik Ölçümler

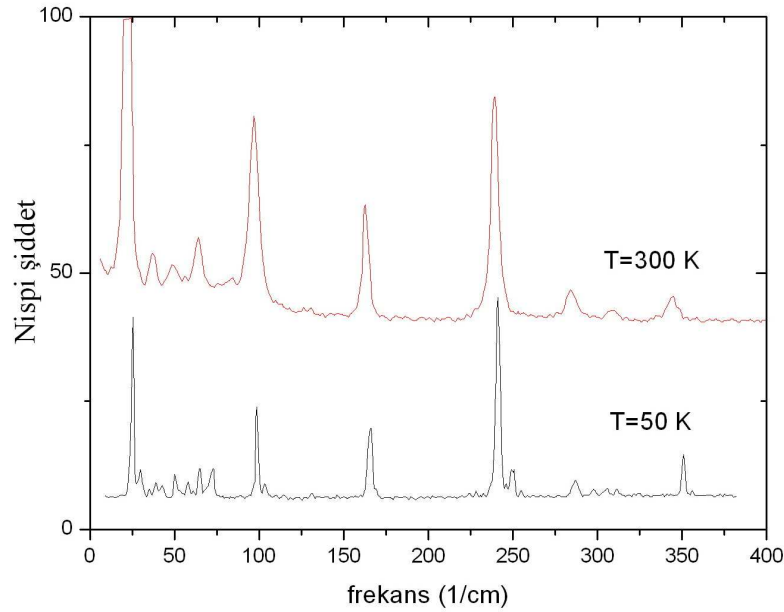
2.2.1 Raman çalışması

Yapısal araştırmaların yanısıra, TlGaSe₂ kristalinin Raman saçılması deneyleri sıcaklığa bağımlı bir yumuşak modun varlığını improper ferroelektrikler için ortaya

koyar [15]. Fakat burada z eksenı boyunca temel hücrenin hacminin dört katlı olmasının sebebi açık değildir.

Bir başka deyişle Raman çalışmaları; spektrum içinde sadece yumuşak bir modun var olduğunu ortaya koymaktadır. Fakat birim hücre hacminin dört katlı olmasıyla faz geçişlerinde bazı kayda değer özellikler hakkında bilgi verememektedir.

TlGaSe₂ kristali farklı sıcaklıklarda Raman spektrumu incelenmiştir. Raman piklerinin 10–320 cm⁻¹ frekans bölgesi içinde çizgi genişlikleri ve frekans değişiminin sıcaklığa bağılılığı 50–320 K sıcaklıkları arasında incelenmiştir. Bu inceleme sonunda çizgi genişlikleri ve fonon frekanslarının sıcaklığa bağılılığı katkılara karşı termal genişleme ve örgü dinamiği ile açık bir şekilde tanımlanmıştır. Dokuzuncu ve onyedinci Raman çizgileri sırasıyla 320 ve 50 K de gözlenmiştir. Ayrıca artan sıcaklıkla birlikte Raman-aktif modlarının değiştiği ve genişlediği görülmektedir [15].

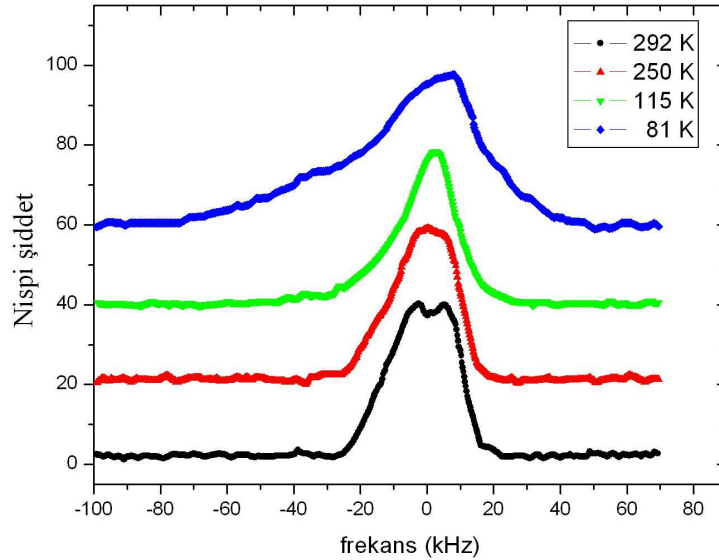


Şekil 2.2. TlGaSe₂ katmanlı kristalinin T=50 K ve 320 K de Raman spektroskopisi

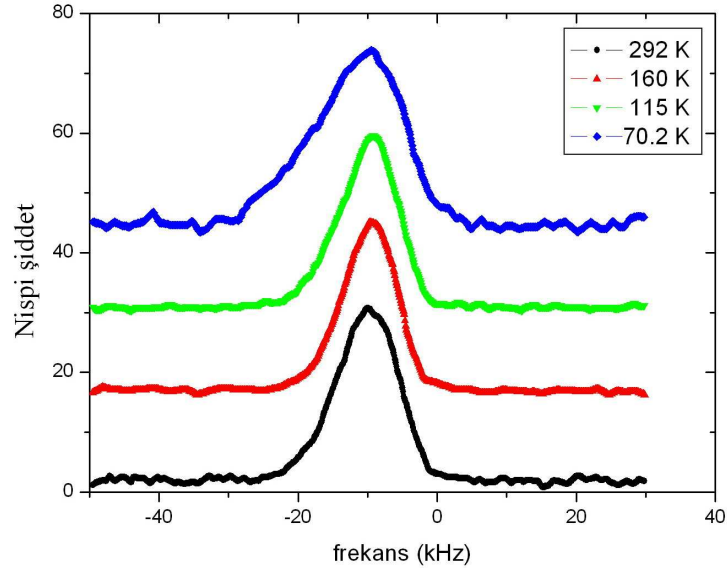
2.2.2. NMR çalışması

Sıcaklığa bağlı NMR spektrumu ve spin-örgü durulma ölçümleri, oransız faz geçişindeki modülasyon dalga dinamiğinin ve oransız yapının uzaysal değişimini iyi bir şekilde yansıtmaktadır. Bu nedenle Nükleer Magnetik Rezonans (NMR), oransız faz geçişi sistemlerinin çalışmaları için kullanılan eşsiz bir tekniktir.

TlGaSe₂ katmanlı kristali için oda sıcaklığında oransızlık durumunu ve faz geçişlerini incelemek için NMR çalışması yapılmıştır [16]. Bu çalışmada toz haline gelmiş TlGaSe₂ malzemesinden alınan ^{69,71}Ga ve ²⁰⁵Tl datası oda sıcaklığında incelenmiştir ve 118 K, 108 K ve 65 K civarında faz geçişleri olduğu gözlemlenmiştir. Faz geçişlerinin yanı sıra ⁶⁹Ga ve ⁷¹Ga izotoplarının spin-örgü durulma zamanı T₁'in 118–108 K sıcaklık aralığında çok kısa hatta neredeyse sıcaklıktan bağımsız olduğu ortaya koyulmuştur. Burada T₁, oransızlık durumu için karakteristik bir özelliktir. TlGaSe₂'nin ⁶⁹Ga ve ⁷¹Ga izotoplarının NMR spektroskopisinin farklı sıcaklıklardaki değişimi Şekil 2.3 ve 2.4'de verilmiştir [16].



Şekil 2.3. TlGaSe₂ kristalinin farklı sıcaklıkta ⁶⁹Ga atomunun NMR spektroskopisi

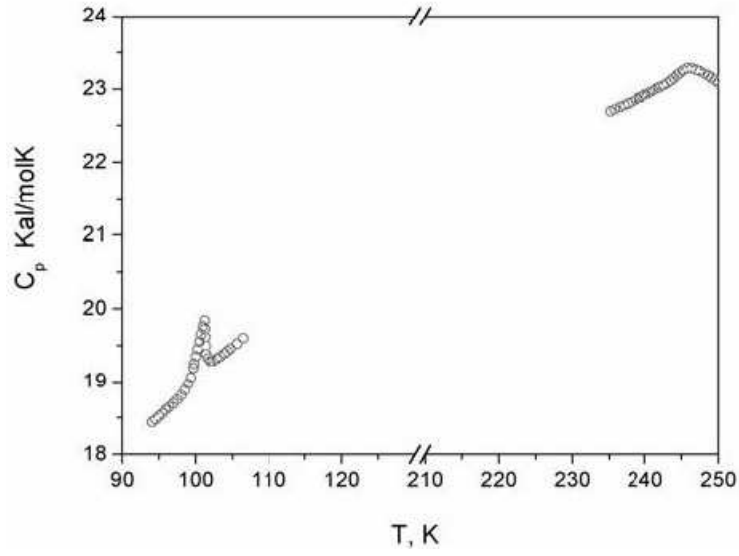


Şekil 2.4. TlGaSe₂ kristalinin farklı sıcaklıkta ⁷¹Ga atomunun NMR spektroskopisi

Bu çalışma sonucunda, 118–108 K sıcaklık aralığında faz geçişinin olduğu doğrulanmış ve bu fazın iki domainin bir arada bulunmasından meydana geldiği ispatlanmıştır [16].

2.3. Kalorimetrik Ölçümler

TlGaSe₂ kristalinin ısı sığası ölçümleri 90–250 K sıcaklık aralığında adyabatik kalorimetre ünitesinde gerçekleştirilmiştir. Bu ölçümler Şekil 2.5’de gösterilmiştir. Şekil 2.5’de görüldüğü üzere kristalin ısı sığasının sıcaklık bağımlılığı dikkate değer değişimler ortaya koymuştur. Ayrıca T<10 K olan sıcaklıklarda kristalin ısı sığasının Debye’nin kübik kanunu uyduğu ve karakteristik Debye sıcaklığının 97±2 K civarında olduğu saptanmıştır [23].



Şekil 2.5. TlGaSe₂ kristalinin ısı kapasitesinin sıcaklıkla değişimi

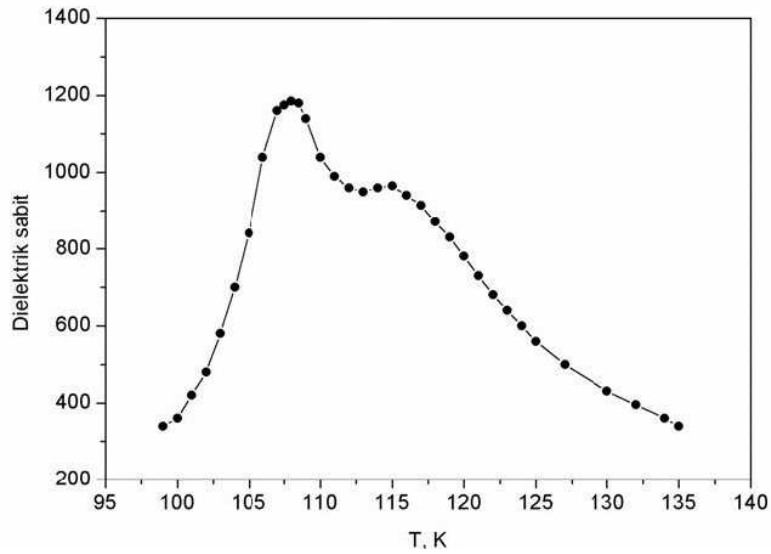
2.4. Dielektrik Ölçümler

2.4.1. TlGaSe₂ kristalinin sıcaklığa bağlılığı

Geçmiş yıllarda yapılan çalışmalarda dielektrik ölçümler sonucunda TlGaSe₂ kristalinin oda sıcaklığından düşük sıcaklıklarda ardışık faz geçişlerine uğradığı anlaşılmıştır.

Soğutulan TlGaSe₂ kristali 116 K ve 107 K sıcaklıklarında ardı ardına faz geçişlerine uğramaktadır. 98–135 K sıcaklık aralığında, dielektrik sabitin sıcaklığa bağlılığı Şekil 2.6'da gösterilmiştir [17–19].

Yapısal incelemelere göre, oransız faza geçiş Brillouin bölgesindeki $q_i(\delta, \delta, 0.25)$ ile karakterize edilen modun yumuşaması ile olur. Burada δ oransızlık parametresi olup, değeri $\delta=0.012$ 'dir. $T_c \approx 107$ K sıcaklığında oranlı antiferroelektrik faz geçişi, yumuşak modun $q_c(0,0,0.25)$ deki değerinde iken yumuşaması ile olur. Bu faz geçişinde birim hücre katmanlara dik yönde dört kat artar.

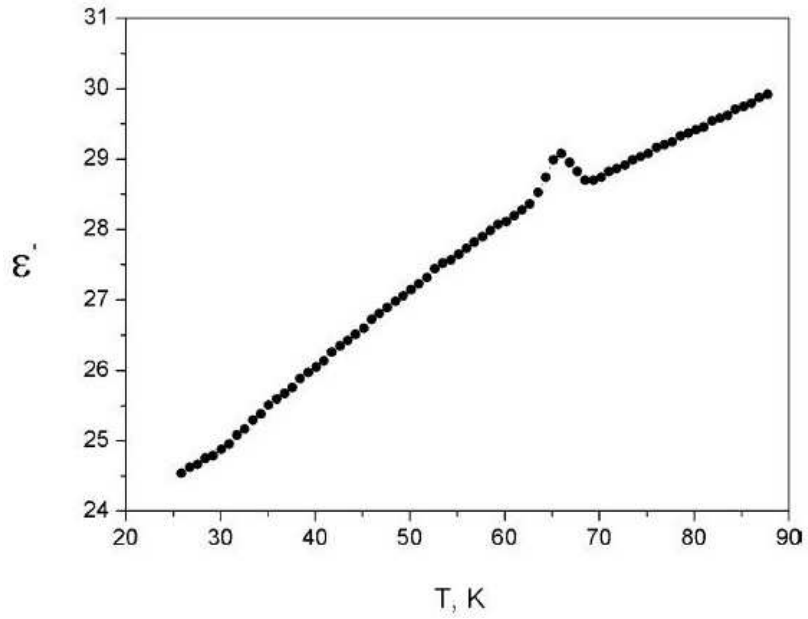


Şekil 2.6. TI GaSe₂ kristalinin dielektrik sabitinin sıcaklıkla değişimi

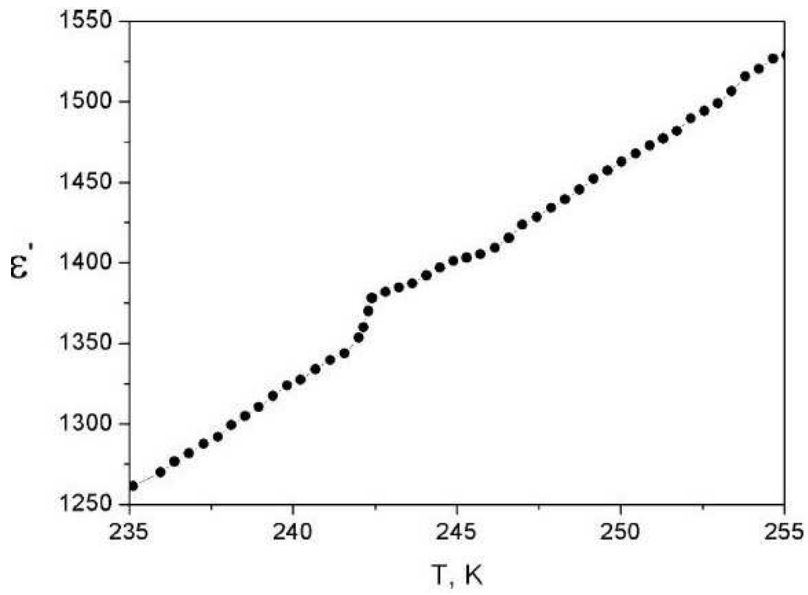
Şekil 2.7’de görüldüğü üzere, art arda gerçekleşen faz geçişlerine ek olarak 65 K de zayıf bir ferroelektrik faz geçişi ortaya çıkmıştır [30]. Bu durum eşit olmayan alt örgüler modelinin kullanılması ile açıklanır. Bu faz geçişinde dielektrik sabit sadece birkaç birimlik bir artış göstermektedir.

Aynı zamanda, TI GaSe₂ kristali $T_i \approx 242$ K sıcaklığında paraelektrik fazdan oransız faza ikinci tür faz geçişi ortaya koyar. Dielektrik ölçümlere uygun olarak, sonuçlar oransız faz geçişinin bu sıcaklıkta gerçekleştiğini doğrulamaktadır. Dielektrik sabitin reel kısmının sıcaklığa bağlılığı Şekil 2.8’de gösterilmektedir [17].

Bu zamana kadar çalışmalar, 90–140 K sıcaklık aralığındaki bölgede art arda gerçekleşen faz geçişleri sırasında malzemenin fiziksel özellikleri üzerinde odaklanmıştır. Kısa bir süre önce dielektrik spektroskopisi yöntemi ile yeni oransız faz geçişinin 242 K sıcaklığında gerçekleştiği gözlenmiştir [17].



Şekil 2.7. Zayıf ferroelektrik faz geçişi ile TlGaSe_2 'nin dielektrik sabitinin reel kısmının sıcaklığa bağlılığı

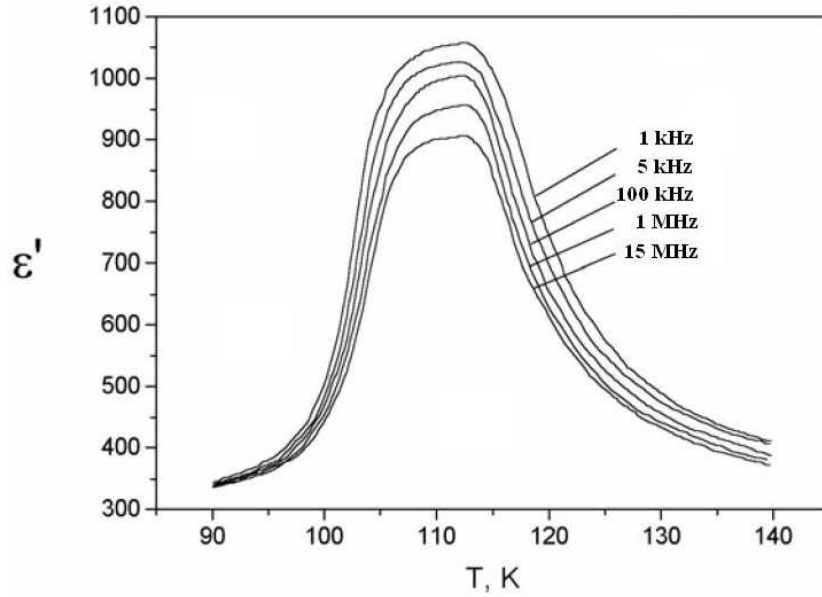


Şekil 2.8. Oransız faz geçişi ile TlGaSe_2 'nin dielektrik sabitinin reel kısmının sıcaklığa bağlılığı

2.4.2. TlGaSe_2 kristalinin dielektrik sabitinin farklı frekanslarda sıcaklığa bağlılığı

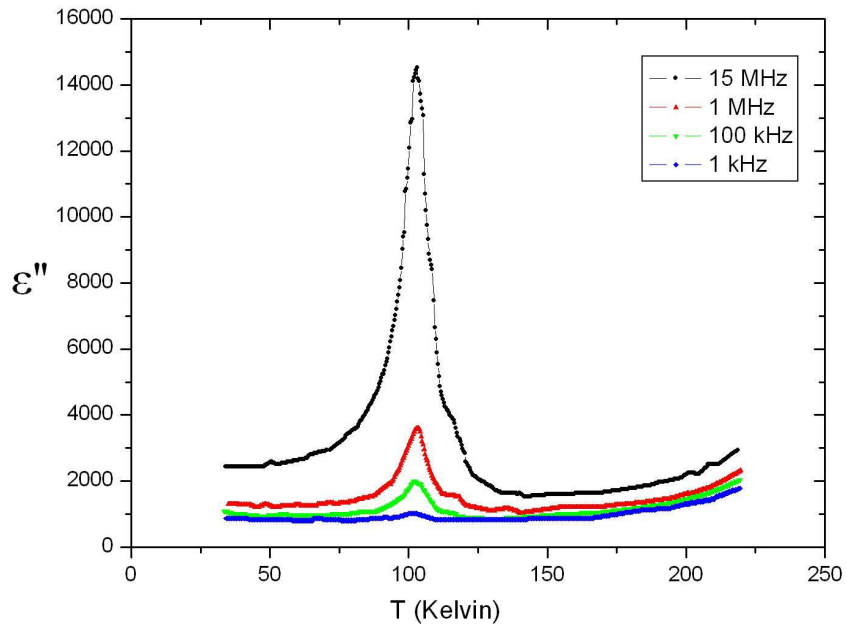
TlGaSe_2 kristalinin dielektrik sabitinin reel ve imajiner kısmının değişik frekanslarda sıcaklığa bağlılığı 1 kHz–15 MHz frekans aralığında incelenmiştir. Bu

ölçümler soğutma esnasında yapılmıştır. Yapılan ölçümde frekans arttıkça dielektrik sabitin reel kısmında azalma olduğu gözlenmiştir. Bu olay artan frekansla dielektrik sabite katkı veren bileşenlerin azalmasından meydana geldiği düşüncesi ile açıklanmıştır. Aynı zamanda bu çalışmada 108 K ve 115 K de faz geçişi olduğu doğrulanmaktadır. Bu değişim Şekil 2.9'da gösterilmiştir [31].



Şekil 2.9. TlGaSe₂'nin dielektrik sabitinin reel kısmının farklı frekanslarda sıcaklığa bağlılığı

Dielektrik sabitin imajiner kısmının da aynı frekans ve sıcaklık aralığında ölçümler yapılmıştır. Yapılan ölçümler sonucunda 105 K sıcaklığında tek bir pik ortaya çıktığı gözlenmiştir (Şekil 2.10). Bu pik, dielektrik sabitin reel kısmının sıcaklığa bağlılığındaki 115 K ve 108 K deki faz geçişinin sonucunda tek bir antiferroelektrik yapının oluşumu ile ilişkili olduğu söylenebilir. Aynı zamanda frekans arttıkça, dielektrik sabitin imajiner kısmının arttığıda gözlenmiştir [31].



Şekil 2.10. TlGaSe₂ 'nin dielektrik sabitinin imajiner kısmının farklı frekanslarda sıcaklığa bağlılığı

BÖLÜM 3. DENEYSEL AYRINTILAR

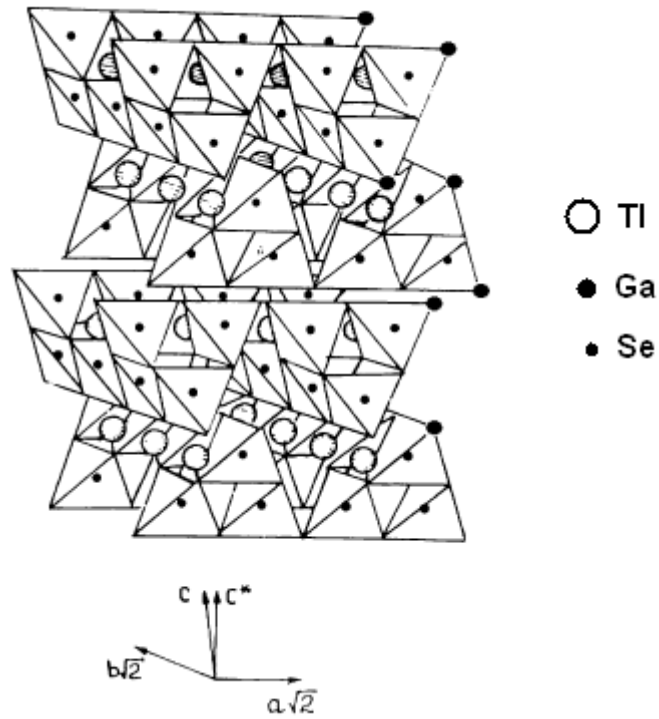
3.1. TlGaSe₂ Kristal Yapısı

TlGaSe₂ kristali, kimyasal formülü TlBX₂ (B = Ga veya In ve X = S veya Se) ile ifade edilen ferroelektrik özelliklere sahip kristal grubunda yer almaktadır. Bu kristal oda sıcaklığında C_{2h}⁶ simetrisine sahip monoklinik yapıya uymaktadır. Kristal; köşelerine metal kalgojen tipi atomların bağlı olduğu Ga₄Se₁₀ tetrahedralerinden oluşur. Yan yana gelen ardışık tetrahedralerin köşelerindeki Ga atomları ortakdır. Tl atomları üçgen kaviteler içinde yerleşmiştir [17–19]. Ardışık tetrahedral tabakalar birbirine diktirler. Kristali meydana getiren atomlar arası mesafeler 3.45 Å⁰ (Tl-Se), 3.92 Å⁰ (Se-Se) ve 3.42 Å⁰ (Tl,Tl) [22].

Tablo 3.1. TlGaSe₂ katmanlı kristalinin örgü Sabitleri ve eksenler arasındaki açılar [5]

Kristal	Kristal Yapısı	a (Å ⁰)	b (Å ⁰)	c (Å ⁰)	β
TlGaSe ₂	Monoklinik	10.772	10.771	15.636	100.06 ⁰

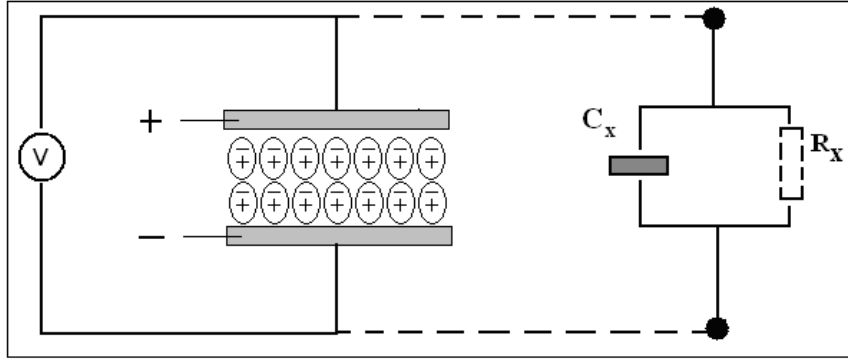
Aynı zamanda, TlGaSe₂ kristali daha koyu kırmızı renkte, saydam, çok sert, kırılğan bir yapıya da sahiptir. Bu kristal yapısı Şekil 3.1’de gösterilmektedir [32].



Şekil 3.1. TlGaSe_2 kristalinin yapısı

3.2. Dielektrik Ölçümler

Kristalin dielektrik sabiti ve iletkenlik ölçümleri için dielektrik spektroskopi uygun yöntemlerden biridir. Dielektrik ölçümler için malzemeye uygulanan bir elektromagnetik dalga ve bu sinyale karşı verdiği cevap kapasitans köprüsü metoduyla değerlendirmek suretiyle elektriksel yük sığası ve iletkenliği aynı anda ölçülebilir. Kristallerin elektrot görevi görmesi nedeniyle paralel kenarları gümüş pasta ile kaplanmaktadır. Sonunda ölçülen malzeme bir kapasitans şeklini almıştır. Bir başka deyişle; plakalar arasında dielektrik madde olduğu durumda, arası boş olan durumdan daha fazla yük depo edilir.



Şekil 3.2. Devre şeması

Bu kapasitans dielektrik sabite bağlıdır ve aşağıdaki eşitliklerle ifade edilir;

$$\epsilon' = \frac{C_0}{C_x} \quad (3.1)$$

$$\epsilon'' = \frac{1}{C_0 \omega R_x} \quad (3.2)$$

$$\tan \delta = \frac{1}{C_x R_x \omega} \quad (3.3)$$

$$C_0 = \frac{A \epsilon_0}{d} \quad (3.4)$$

Burada C_x örneğin kapasitansı, R_x ısıya bağlı kayıp, C_0 boşluğun (vakum) kapasitansı, ϵ_0 boşluğun dielektrik sabiti, ϵ' dielektrik sabitin reel kısmı, ϵ'' dielektrik sabitin imajiner kısmı, ω açısal frekans, A numunenin alanı, d ise numunenin kalınlığıdır.

Dielektrik dağılımını açıklamak için genellikle kullanılan dielektrik fonksiyonu en genel şekliyle kompleks olarak ifade edilir;

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) \quad (3.5)$$

Kompleks dielektrik sabit, $\varepsilon'(\omega)$ reel ve $\varepsilon''(\omega)$ imajiner kısımlarından oluşmaktadır.

Empedansın dielektrik sabite bağıllığı;

$$\varepsilon'(\omega) = \frac{Z''}{\omega C_0 (Z'^2 + Z''^2)} \quad (3.6)$$

$$\varepsilon''(\omega) = \frac{Z'}{\omega C_0 (Z'^2 + Z''^2)} \quad (3.7)$$

ile ifade edilmektedir.

Aynı şekilde kompleks empedans, reel ve imajiner kısımdan oluşmakta ve kapasitansa bağlı ifadeleri;

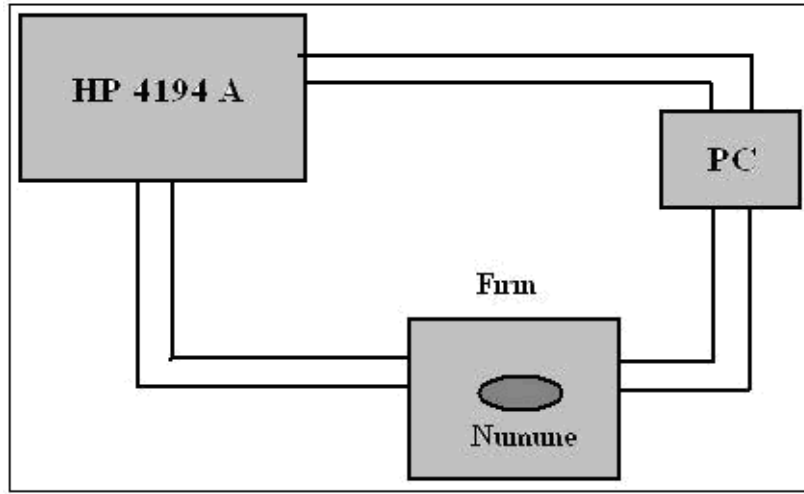
$$Z^*(\omega) = Z'(\omega) - iZ''(\omega) = \frac{1}{iC_0\omega\varepsilon^*(\omega)} \quad (3.8)$$

$$Z'(\omega) = \frac{R_x}{1 + (\omega R_x C_x)^2} \quad (3.9)$$

$$Z''(\omega) = R_x \left[\frac{\omega R_x C_x}{1 + (\omega R_x C_x)^2} \right] \quad (3.10)$$

formülleri ile verilmektedir.

Kapasitans çok küçük olduğundan dolayı dış faktörlerden etkilenmesi söz konusudur. Bu etkilerden kurtulmak için tüm sistemin topraklanması gerekmektedir. Bu sebeple fırın ve empedans analizörü arasındaki kablolama sisteminde kayıp faktörü düşük kablolar kullanılmıştır



Şekil 3.3. Dielektrik spektroskopisi deney düzeneği

BÖLÜM 4. TEORİK TEMELLER

4.1. Klasik Sıçrama Modeli

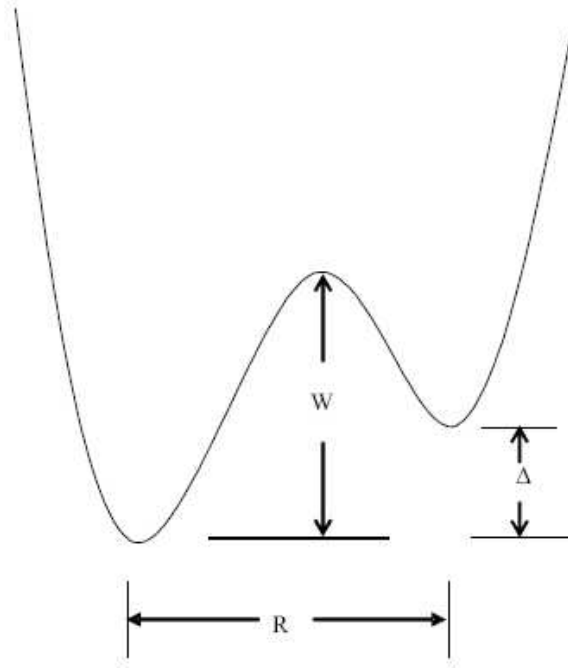
Durulma olayından kaynaklanan sıçrama, bir enerji bariyeri ile ayrılmış iki seviyenin üzerindeki klasik termal aktivasyon içermektedir. Bu süreç görece bir yüksek sıcaklık olayıdır ve buradaki rasgele değişim $\xi = W/k_B T$, seviyeler arası mesafe üzerindeki bağıllığı belirgin bir şekilde ortaya koymaz. Değişik tipteki sıçrama modelleri alt başlıklar altında verilmektedir.

4.1.1. Atomik sıçrama (AH)

Amorf yarıiletkenler için dielektrik durulmada bir teorik sıçrama modelinin ilk uygulaması Pollak ve Pike tarafından yapılmış ve sonraları bu alandaki çalışmalar Le Cleach tarafından devam ettirilmiştir. Onlar çalışmalarında, tüm atomların veya bir kısmının iyonlaşmış olduğunu, bir bariyer yüksekliği W üzerinde sıçramayı, ayrılmış iki seviye ve bu seviyelerin Δ enerji farkına sahip olduğunu farz etmişlerdir. Bu oluşum Şekil 4.1'de gösterilmektedir. Bu sıçrama süreci, değişen aralıkta sıçrama (VRH) olarak ta isimlendirilir. Bu nedenle, bu bariyer yüksekliği seviyeler arası mesafe R 'den bağımsız olduğu için dikkate alınmıştır. Ayrıca, n atomik geçişi kapsayan dipol momentin bir sabit ve W 'nın, R 'den bağımsız olduğu dikkate alınmıştır. Farz edelim ki; bariyer yüksekliğinin $P(W)$ dağılımı $0 \gg W \gg W_0$ aralığında değişmez olsun ve enerji farkı Δ , 0 ile Δ_0 arasında rast gele bir değer alsın. Bu süreç için iletkenlik ifadesi;

$$\sigma(\omega) = \frac{Nk_B T}{6W_0 \Delta_0} \pi p_0^2 \omega \tanh\left(\frac{\Delta_0}{2k_B T}\right) \quad (4.1)$$

ile verilmektedir. Burada k_B boltzman sabiti, N ise birim hacimdeki çiftlenim sayısıdır. Bundan dolayı, (4.1) eşitliğinde açık şekilde ifade edilen atomik sıçrama, frekans ve sıcaklığa bağlı a.c. iletkenlikte lineer bir davranışa neden olmaktadır. Bu lineer davranış, sıçrama mesafesi R_H 'nin (veya dipol momentin) ω 'dan bağımsız olduğundan kaynaklanmaktadır.



Şekil 4.1. Bariyer üzerindeki klasik sıçrama. W bariyer yüksekliği, R seviyeler arası mesafe, Δ seviyeler arası enerji farkı

Bundan başka, belirli bir ω_c frekansındaki ölçümde ve $\omega\tau = 1$ durumu için muhtemel sıçrama enerjisi;

$$W_H = k_B T \ln(1/\omega\tau_0) \quad (4.2)$$

ifadesi ile verilir. Bu ifade bariyer yüksekliğinin seviyeler arası mesafe R_H 'den bağımsız olduğunu ortaya koymaktadır. Bununla birlikte belirli amorf malzemeler için R_H 'nin, bariyer yüksekliği W 'nın bir fonksiyonu olduğu bulunmuştur. Bu olayı

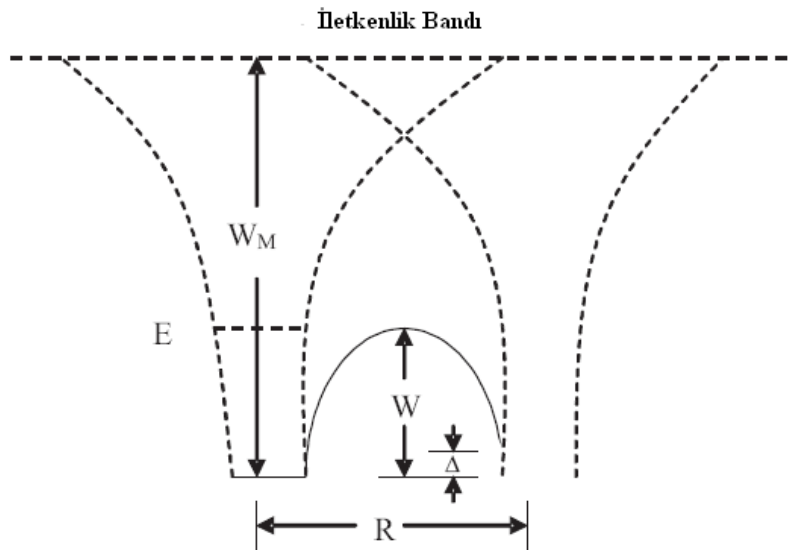
açıklamak için ise bir enerji bariyeri ile özdeşleşmiş sıçrama modeli (CBH) geliştirilmiştir [33].

4.2.2. Enerji bariyeri ile özdeşleşmiş sıçrama modeli (CBH)

1972 yılında Pike, iki seviye arasındaki bariyer üzerindeki termal aktivasyon ile bir elektron transfer modeli ileri sürmüştür. Bu modele göre a.c. iletkenlik, yapısal kusurlar arasındaki elektron hareketinden ortaya çıkmaktadır. Seviyeler arası mesafenin yakınlığı için efektif bariyer yüksekliği W_H 'nın bir W değerinde küçülmesi sonucu Şekil 4.2' de gösterilmektedir [33]. Tek elektron geçişi için W ;

$$W = W_H - \frac{4ne^2}{\epsilon R_H} \quad (4.3)$$

eşitliği ile verilmektedir. Burada ϵ efektif dielektrik sabittir. Eğer R_H çok büyük ise ϵ , bulk dielektrik sabiti olur. n ise sıçrayan elektronların sayısıdır. (4.2) eşitliği bariyer yüksekliği ile seviyeler arası mesafe arasındaki ilişkiyi verir. Bundan dolayı bu süreç enerji bariyeri ile özdeşleşmiş sıçrama olarak isimlendirilir.



Şekil 4.2. R mesafesindeki bir taşıyıcının deneye bağlanmış potansiyeli

Bu sıçrama için durulma zamanı τ , değişen ξ nin fonksiyonudur ve

$$\tau = \tau_0 \exp(W/k_B T) \quad (4.4)$$

eşitliği ile verilir. Dar band için (4.5) eşitliği kullanılarak, a.c. iletkenliğin reel kısmı;

$$\sigma(\omega) = \int_0^{\infty} \alpha_1 n(\tau) \frac{\omega^2 \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)} d\tau \quad (4.5)$$

$$\sigma(\omega) = NN_p \int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} \alpha_1(\tau, \xi) \frac{\omega^2 \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)} d\tau \quad (4.6)$$

eşitliği ile verilir. Burada N ve N_p sınırlandırılmış durumların konsantrasyonu, τ durulma zamanıdır ve $\tau_{\min} = \tau_0$ ile $\tau_{\max} = \tau_0 \exp(W_H/k_B T)$ arasında değer alır. $\alpha(\tau, \xi)$ ise τ ve ξ parametreleri tarafından ifade edilen, istatistiksel olarak çiftlerin ortalama kutuplanabilirliğidir ve matematiksel olarak (4.7) eşitliği ile verilir.

$$\alpha_1 = \frac{e^2 R_H^2}{3k_B T \cosh^2(\Delta/2kT)} \quad (4.7)$$

Fakat aynı enerji seviyesinde iken $\Delta \approx 0$ olduğundan (4.7) eşitliği;

$$\alpha_1 = \frac{n^2 e^2 R^2}{12k_B T} \quad (4.8)$$

şeklinde ifade edilir.

Seviyelerdeki sınırlı dağılım için olasılık,

$$P(R)dR = 4\pi R^2 dR \quad (4.9)$$

ile verilir. (4.8) ve (4.9) eşitliği, (4.6) ifadesinde yerine yazılırsa,

$$\sigma(\omega) = NN_p \int_{\tau_0}^{\tau_0 \exp(W_H/k_B T)} \frac{n^2 e^2 R^2}{12k_B T} \frac{\omega^2 \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)} 4\pi R^2 dR \quad (4.10)$$

eşitliği elde edilir. Buna ek olarak (4.3) eşitliğini

$$dR = \frac{\varepsilon R^2}{4ne^2} dW \quad (4.11)$$

şeklinde yazmamız mümkündür. (4.11) eşitliği (4.10) ifadesine uygulandığında,

$$\sigma(\omega) = \frac{NN_p n \omega \pi \varepsilon}{12k_B T} \int_0^{\infty} \frac{\omega \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)} R_H^6 dW \quad (4.12)$$

eşitliği elde edilmektedir.

Ayrıca, (4.4) eşitliğinde değişkenlere göre eşitliğin her iki tarafının türevi alındığında,

$$d\tau = \frac{\tau_0}{k_B T} \exp(W/k_B T) dW \quad (4.13)$$

$$dW = \frac{k_B T}{\tau} d\tau \quad (4.14)$$

eşitlikleri elde edilir. Burada (4.13) ve (4.14) eşitlikleri, (4.12) ifadesinde yerine yazılırsa,

$$\sigma(\omega) = \frac{NN_p n \omega \pi \varepsilon}{12} \int_0^{\infty} \frac{\omega \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)} R_H^6 \frac{d\tau}{\tau} \quad (4.15)$$

ifadesi ortaya çıkmaktadır. Bu ifadede kutup noktaları, $\omega\tau=1$ olduğunda geçerlidir ve integral δ -fonksiyonu tipindedir. Böylece, bu bölgeler a.c. iletkenliğe katkıda

bulunurlar. Burada $\omega\tau=1$ ve R_H , ω gibi τ 'dan bağımsızdır. Böylece (4.15) eşitliğini basitleştirecek olursak [33],

$$\sigma(\omega) = \frac{NN_p n \omega \pi \varepsilon}{12} R_H^6 \int_0^{\infty} \frac{\omega \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)} \frac{d\tau}{\tau} \quad (4.16)$$

ifadesi elde edilir. Bu integral çözüldüğünde,

$$\int_0^{\infty} \frac{\omega \tau}{(1 + \omega^2 \tau^2)} \frac{d\tau}{\tau} = \frac{\pi}{2} - \tan^{-1}(\omega \tau_0) \quad (4.17)$$

$$\sigma(\omega) = \frac{NN_p n \omega \pi \varepsilon R_H^6}{12 k_B T} \left[\frac{\pi}{2} - \tan^{-1}(\omega \tau_0) \right] \quad (4.18)$$

eşitlikleri elde edilir. Çok küçük ω değerinde (4.18) eşitliği,

$$\sigma(\omega) = \frac{NN_p n \omega \pi^2 \varepsilon R_H^6}{24} \quad (4.19)$$

şeklinde ifade edilir. Burada bipolaron sıçrama için $n=2$ değerini alır. Bununla birlikte seviyeler arası mesafe R_H 'nin basitleştirilmesiyle CBH modelinin yüksek frekanstaki davranışı çalışılmıştır ve (4.3) eşitliği ile verilir [33].

$$R_H = \frac{4ne^2}{\varepsilon(W_H - W)} \quad (4.20)$$

(4.4) eşitliğinde W yerine koyulduğunda,

$$R_H = \frac{4ne^2}{\varepsilon(W_H - k_B T \ln(1/\omega \tau_0))} \quad (4.21)$$

eşitliği elde edilir. (4.21) eşitliğinden R_H 'nin hem frekansa hem de sıcaklığa bağlı olduğu açıkça görülmektedir. (4.19) eşitliğinin çözümü , (4.22) eşitliği göz önüne alınarak yapılmıştır [33].

$$R_H^6 = \left(\frac{4ne^2}{\epsilon} \right) (W_H - W)^{-6} \quad (4.22)$$

Fakat $(W_H - W)^{-6}$ ifadesi,

$$(W_H - W)^{-6} = (1/W_H)^6 \left(1 - \frac{W}{W_H} \right)^{-6} \quad (4.23)$$

eşitliği ile verilir ve bu ifadeye binom açılımı uygulandığında,

$$(W_H - W)^{-6} = \frac{1}{W_H^6} \left[1 + 6 \left(\frac{W}{W_H} \right) + \frac{6 \times 7}{2!} \left(\frac{W}{W_H} \right)^2 + \frac{6 \times 7 \times 8}{3!} \left(\frac{W}{W_H} \right)^3 + \frac{6 \times 7 \times 8 \times 9}{4!} \left(\frac{W}{W_H} \right)^4 + \dots \right] \quad (4.24)$$

$$(W_H - W)^{-6} = \frac{1}{W_H^6} \left[1 + \left(\frac{6W}{W_H} \right) + \frac{1}{2!} \left(\frac{6W}{W_H} \right)^2 + \dots \right] \times \left[1 + 3 \left(\frac{W}{W_H} \right) + \frac{9}{2!} \left(\frac{W}{W_H} \right)^2 + \dots \right] \quad (4.25)$$

eşitlikleri elde edilir. Fakat parantez içindeki kareli ifadeler üstel olarak yazılır ve (4.25) eşitliği de sadeleştirildiğinde,

$$(W_H - W)^{-6} = \frac{1}{W_H^6} \exp \left(\frac{6W}{W_H} \right) \exp \left(\frac{3W}{W_H} \right)^2 \quad (4.26)$$

ifadesi elde edilir. Fakat $W = k_B T \ln(1/\omega\tau_0)$ olduğundan dolayı (4.26) eşitliği,

$$(W_H - W)^{-6} = \frac{1}{W_H^6} \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right)^{6k_B T/W_H} \exp \left[\left(\frac{3k_B T}{W_H} \right)^2 \ln^2 \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) \right] \quad (4.27)$$

$$(W_H - W)^{-6} = \frac{1}{W_H^6} \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right)^\beta \exp \left[\left(\frac{3k_B T}{W_H} \right)^2 \ln^2 \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) \right] \quad (4.28)$$

eşitlikleri ile ifade edilir. (4.19) daki iletkenlik ifadesinde (4.28) eşitliği uygulandığında,

$$\sigma(\omega) = \frac{NN_p n \pi^2 \varepsilon}{24} \omega \frac{1}{W_H^6} \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right)^\beta \exp \left[\left(\frac{3k_B T}{W_H} \right)^2 \ln^2 \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) \right] \quad (4.29)$$

eşitliği elde edilir. Bu eşitlik, bir çeşit üstel yaklaşım ile genişletildiğinde,

$$\sigma(\omega) = \frac{NN_p n \pi^2 \varepsilon}{24} \omega \left(\frac{8e^2}{\varepsilon W_H} \right)^6 \frac{1}{\tau_0^\beta} \omega^{(1-\beta-\gamma)} \quad (4.30)$$

eşitliği elde edilir. Burada

$$\beta = \frac{6k_B T}{W_H} \quad \text{ve} \quad \gamma = 6 \left(\frac{k_B T}{W_H} \right)^2 \ln^2 \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) \quad (4.31)$$

olur.

Bu nedenle,

$$\sigma(\omega) \propto \omega^s \quad (4.32)$$

eşitliği yazılabilir ve burada $s=1-\beta-\gamma$ değerini alır. Maksimum bariyer yüksekliğine bağlı ifade,

$$s = 1 - \frac{(6k_B T/W_H)}{\left[1 - \frac{k_B T}{W_H} \ln(1/\omega\tau_0)\right]} = 1 - \frac{6k_B T}{\left[W_H - k_B T \ln(1/\omega\tau_0)\right]} \quad (4.33)$$

eşitliği ile verilir.

Böylece üstel 's' değeri, sıcaklık ve frekansa da bağlıdır ve $T \rightarrow 0$ K doğrultusuna gittikçe artış göstermektedir. Çok küçük ($W_H/k_B T$) değeri için, $s \approx 1$ 'dir ve frekanstan bağımsızdır. Bir tek yaklaşımla 's' değeri,

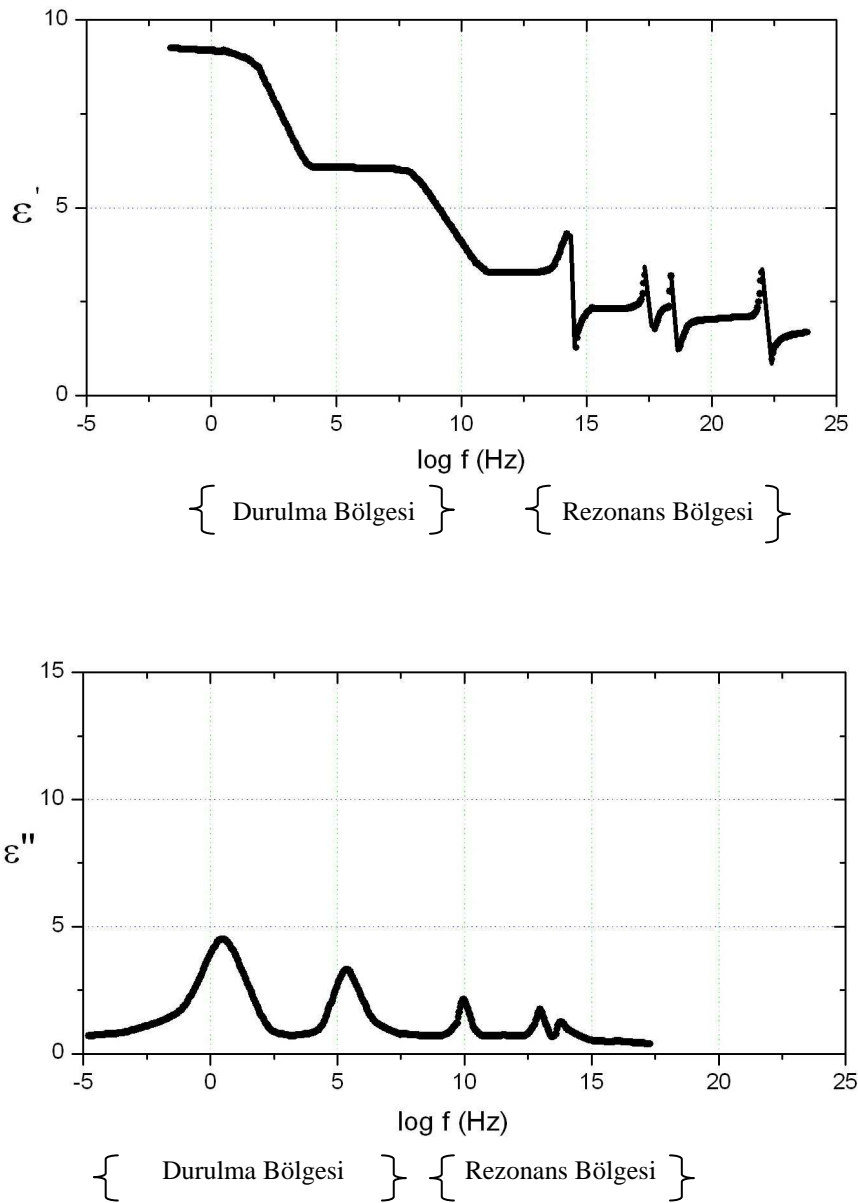
$$s = 1 - \frac{6k_B T}{W_H} \quad (4.34)$$

eşitliği ile ifade edilmektedir.

4.2. Dielektrik Durulma

Dielektrik durulma, moleküllerin içyapılarına ve dielektrik malzemenin moleküllerinin yapısına veya moleküler düzenine bağlı olarak yönelme polarizasyonuna bağlıdır. Durulma zamanı ise, dielektrik malzemede bulunan moleküllerin hareketinin bir ölçüsüdür. Aynı zamanda durulma zamanı, elektrik alanın bir periyot içinde değişim yapması sonucunda, o periyot içinde dipolün yönelme yapması için geçen süre olarak ta ifade edilebilir. Bir malzemede değişen frekans doğrultusunda birden çok durulma olayı gözlemlenebilir.

Yüksek frekanslara doğru gidildikçe rezonans olayı ortaya çıkmaktadır.



Şekil 4.3. Farklı frekansta durulma ve rezonans olaylarının şematik gösterimi

Dielektrik malzemelerde geniş bir frekans aralığında farklı tipteki polarizasyonlar farklı dağılım bölgelerine karşılık gelmektedir. Bu dağılım bölgeleri Şekil 4.3'de görülmektedir [21]. Frekans arttığı zaman, içeren bu mekanizmaların sayısına bağlı polarizasyon azalır. Çok yüksek sıcaklıklarda ise polarizasyonu sadece elektronik katkı etkilemektedir. Aynı zamanda dielektrik sabitin reel kısmının azalışı, frekansın azalmasıyla meydana gelir.

Her bir polarizasyon mekanizması bir kritik frekans f_r (durulma frekansı) ile karakterize edilir. Bu kritik frekans dipollerin özelliğine bağlıdır. Bu frekans uygulanan elektrik alan ile polarizasyon arasında maksimum faz değişimine karşılık gelmektedir. Bunun sonucunda maksimum bir dielektrik kayıp meydana çıkmaktadır. Bununla birlikte yönelim polarizasyonları, arayüzey polarizasyon (yüzey yükleri) ve dipol polarizasyonu, düşük frekanstan mikro dalga frekansına doğru gidildikçe gözlenir. Bu kuvvete karşı koyan hareket sürtünme kuvvetidir yani durulma olayını ifade etmektedir. Deformasyon polarizasyonları, iyonik ve elektronik polarizasyon ise kısa mikrodalga ve infrared bölgesinde meydana çıkmaktadır. Sonraki mekanizmalarda rezonans tip dielektrik dağılımlara (titreşim süreci ve harmonik osilatör tipi) yol açmaktadır.

Farklı frekans bölgelerine karşılık gelen durulma ve rezonans olayları ifade edilecek olunursa;

1. Yüzey yük durulma: bu olayı $\approx 10^2 - 10^6$ Hz frekans aralığında gerçekleşir ve iletkenlik mekanizması ile ilişkilidir. Buradaki f_r değeri yüzey yükleri tarafından etkilenir. Aynı zamanda yüzey yükleri de sıcaklık ve basınç gibi etkenlere de bağlıdır.
2. Ferroelektrik durulma: bu olayı $\approx 10^3 - 10^6$ Hz frekans aralığında gerçekleşir ve nanoyapıdaki ferroelektriklerin işlevlerini ortaya koyar.
3. Yüksek frekans bölgesinde durulma: bu olayı ise $\approx 10^7 - 10^{10}$ Hz frekans aralığında gerçekleşir ve rezonans bölgesidir.

Aynı zamanda dipollerin meydana getirdiği polarizasyon kavramı Debye tarafından ileri sürülmüştür. Debye modeli, elastik geriçağırıcı kuvvetin olmadığı tamamıyla akıcı bir ortam içinde etkileşmeyen dipollerin tekrar yönelimlerini hesaba katmıştır.

Bu modele göre kompleks dielektrik sabit,

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} \quad (4.35)$$

ile ifade edilir. Kompleks dielektrik sabit, reel ve imajiner kısımlarına ayrıldığında;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (4.36)$$

$$\varepsilon''(\omega) = \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{1 + (\omega\tau)^2} \omega\tau \quad (4.37)$$

eşitlikleri elde edilmektedir. Burada τ durulma zamanı, ε_0 düşük frekansta malzemenin dielektrik sabiti ($f_r \ll$ durulma frekansı) ve ε_∞ yüksek frekanstaki malzemenin dielektrik sabitidir ($f_r \gg$ durulma frekansı).

4.3. Elektrokimyasal Empedans Spektroskopisi

4.3.1. Elektrokimyasal empedans kavramı

Elektrik akımına karşı direnme tüm devre elemanlarının bir yeteneğidir. Ohm Yasası, bu gerçeklik üzerine kurularak direnci; voltajın E , akıma I oranı olarak tanımlanır.

$$R = \frac{E}{I} \quad (4.38)$$

Her devre elemanına bir tür direnç gözüyle bakılabilir. İdeal bir direnç;

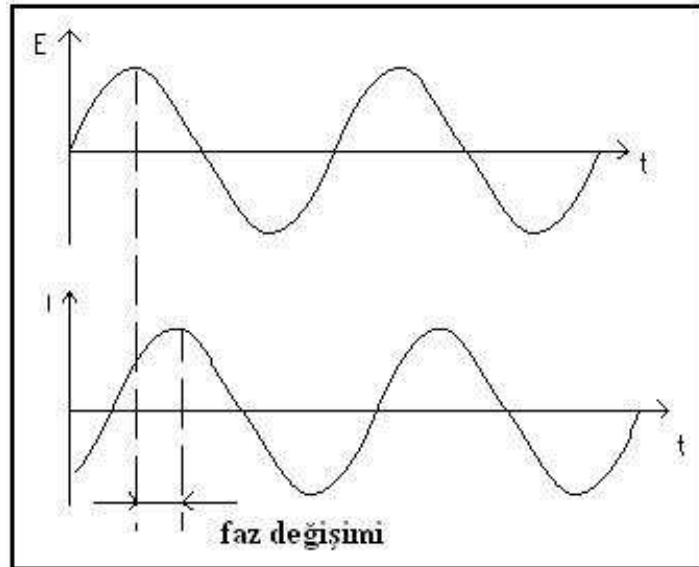
1. Bütün akım ve voltaj değerlerinde Ohm yasasıyla uyumludur.
2. Direncin değeri, frekanstan bağımsızdır.
3. Bir direnç üzerindeki akım ve voltaj aynı fazdadır.

özelliklerine sahiptir.

Fizik, çok fazla karmaşık davranışı sergileyen devre elemanları içerir. Bu elemanlar, direncin basit düşüncesini geliştirmek zorunda bırakmıştır. Onun yerine biz daha genel bir devre parametresi olan empedansı kullanabiliriz. Direnç gibi empedans da, akıma direnme yeteneğinin bir ölçüsüdür denilebilmektedir. Dirençten farklı olarak empedans sınırsızdır.

Genellikle elektrokimyasal empedans, bir elektrokimyasal hücreye a.c ya da d.c potansiyel uygulanarak ve hücre boyunca akım ölçülerek elde etmektir. Hücre bir sinüsoidal potansiyel ile uyarıldığı varsayılırsa; bu potansiyele yanıt, bir a.c akım sinyalidir. Bu akım sinyali Fourier serisinin toplamı olarak analiz edilebilmektedir.

Elektrokimyasal empedans normalde küçük bir uyarı sinyali kullanılarak ölçülmektedir. Bu hücrenin cevabının pseudo-lineer olması için yapılmıştır. Lineer bir sistemde, bir sinüsoidal potansiyele yanıt aynı frekansta ancak farklı evrede yine bir sinüsoidal olacaktır.



Şekil 4.4. Lineer bir sistemde sinüsoidal akım cevabı

Bu genişleyen sinyal, (4.39) eşitliğindeki gibi zamanın bir fonksiyonu şeklinde ifade edilmektedir.

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t) \quad (4.39)$$

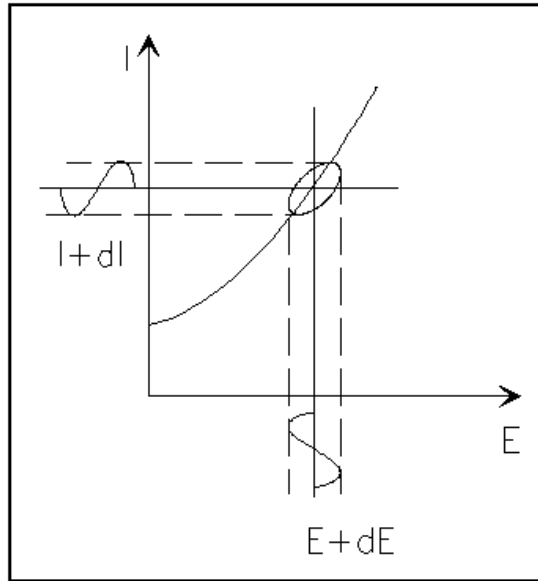
Burada $E(t)$, bir t zamanındaki potansiyel, E_0 sinyalin büyüklüğü, ω ise açısal frekanstır ve $\omega=2\pi f$ ile verilir. Lineer bir sistemde, akımın cevabı $I(t)$, faz (ϕ) ve sahip olduğu farklı büyüklükle (I_0) değişmektedir.

$$I(t) = I_0 \cos(\omega t - \phi) \quad (4.40)$$

Bunun yanı sıra Ohm yasasına benzer bir ifadeyle sistemin empedansı, (4.41) eşitliği ile hesaplanabilir.

$$Z = \frac{E(t)}{I(t)} = \frac{E_0 \cos(\omega t)}{I_0 \cos(\omega t - \phi)} = Z_0 \frac{\cos(\omega t)}{\cos(\omega t - \phi)} \quad (4.41)$$

Eğer bu ifadenin grafiği çizilecek olursa, ortaya bir kapalı eğri çıkmaktadır. Bu eğri “Lissajous Eğrisi” olarak adlandırılır. Lissajous eğrisinin osiloskop aracılığıyla çizimi, frekans analizörlerinin kullanılmaya başlanmasından önceki dönemde kabul edilen bir empedans ölçüm tekniğiydi.



Şekil 4.5. Gerçek Lissajous eğrisi

Empedans ifadesi, Euler denklemi ($\exp(i,\varphi)=\cos\varphi+i\sin\varphi$) ile bağlantılıdır ve empedansı, bir kompleks fonksiyon gibi ifade etmek mümkündür. Bu potansiyel (4.42) eşitliğindeki gibi ifade edilmektedir.

$$E(t)=E_0\exp(i\omega t) \quad (4.42)$$

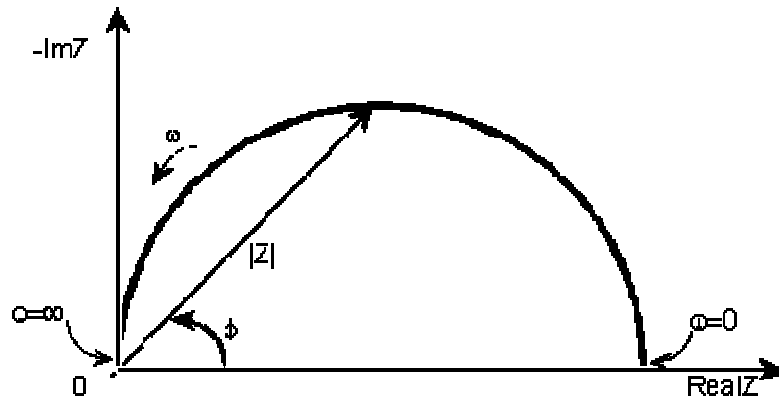
Bu sinyale akımın verdiği cevap ise,

$$I(t)=I_0\exp(i\omega t-i\varphi) \quad (4.43)$$

dir. Böylece (4.41) eşitliğindeki empedans ifadesi, kompleks bir nicelik gibi yazılmaktadır.

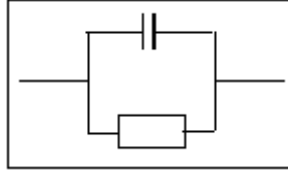
$$Z = \frac{E}{I} = Z_0\exp(i\varphi) = Z_0(\cos\varphi + i\sin\varphi) \quad (4.44)$$

Bu eşitlik incelendiğinde ifadenin, biri reel diğeri imajiner olmak üzere iki kısımdan oluştuğu görülmektedir. Reel kısma ait değerleri x-eksenine, imajiner kısma ait değerleri y-eksenine yerleştirilirse ortaya Şekil 4.6'da gösterildiği gibi bir yarım daire çıkar [34]. Bu dairenin y-ekseni negatiftir ve daire üzerindeki her nokta farklı bir frekansta empedanstır. Daire üzerinde soldan sağa gittikçe frekans azalır.



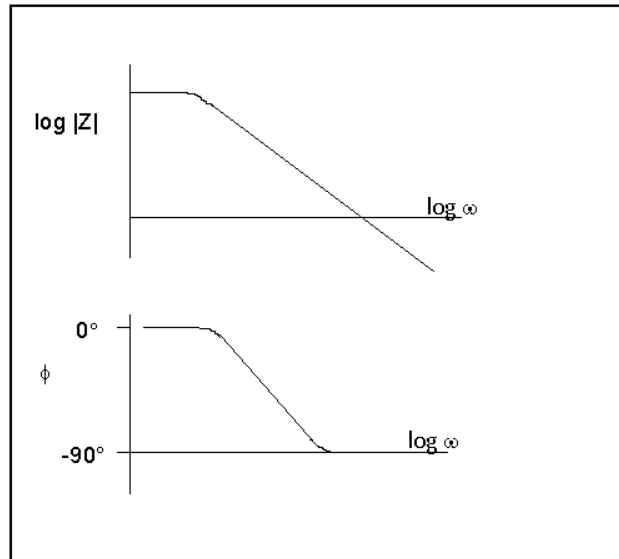
Şekil 4.6. Empedansın reel kısmının imajiner kısmına bağlılığı.

Yarım daire tek bir zaman sabitinin karakteristiğidir. Elektrokimyasal empedans çizimleri genellikle birkaç zaman sabitini içermektedir. Bu durumda birbirini takip eden daireler [20,24,27] olabileceği gibi, iç içe geçmiş daireler şeklinde de kendini göstermektedir [25,26].



Şekil 4.7. Tek zaman sabitine eşdeğer basit devre

Şekil 4.7’de gösterilen devrenin beklenen yanıtı, Şekil 4.8’de gösterildiği gibidir [34].



Şekil 4.8. Tek zaman sabitli devrenin beklenen yanıt grafiği

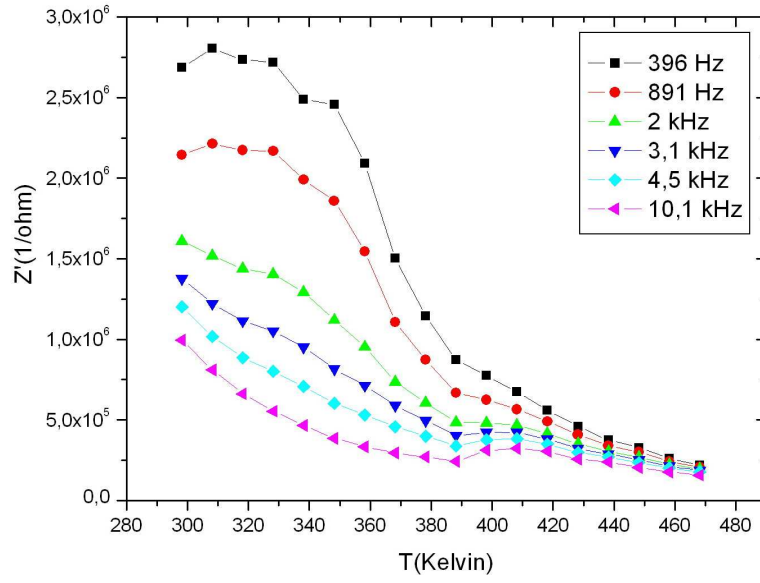
BÖLÜM 5. DENEYSEL SONUÇLAR

5.1. TlGaSe₂ Kristalinin Empedans Analizi

5.1.1. Empedansın reel kısmının sıcaklık bağımlılığı

Empedansın sıcaklık analizi; 396 Hz, 891 Hz, 2 kHz, 3.1 kHz, 4.5 kHz, 10.1 kHz frekans aralığında gerçekleştirilmiştir. Genel olarak bakıldığında frekans arttıkça empedansın reel kısmında azalma görülmektedir. Aynı zamanda sıcaklık arttıkça da empedansın reel kısmı azalmaktadır. 298–380 K sıcaklık aralığında ani bir azalış ortaya çıkmıştır ve bu değişim artan frekans ile ortadan kalkmaktadır. Bununla birlikte yüksek sıcaklık (360–468 K) ve yüksek frekans bölgesinde küçük bir değişim daha ortaya çıkmıştır. Buradaki değişim, sadece yüksek frekans ve sıcaklıkta etkisini göstermektedir. Bu olay ise dipollerden kaynaklanmaktadır.

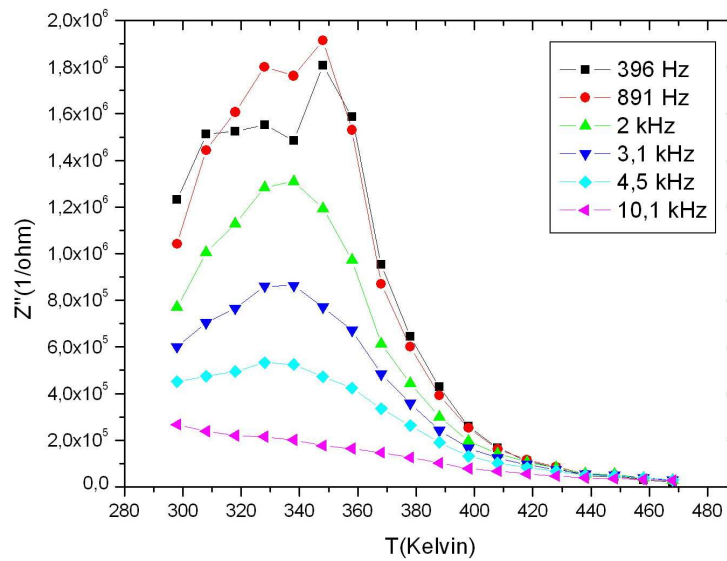
Sonuç olarak, iki farklı sıcaklık ve frekans bölgesinde değişimin olması malzemenin iletkenlik analizinde ortaya koyduğu davranışla örtüşmektedir. Sıcaklığa bağlı bu değişim Şekil 5.1’de gösterilmektedir.



Şekil 5.1. TlGaSe₂ kristalinin empedansın reel kısmının sıcaklığa bağlılığı

5.1.2. Empedansın imajiner kısmının sıcaklık bağımlılığı

Ölçümler 396 Hz, 891 Hz, 2 kHz, 3.1 kHz, 4.5 kHz, 10.1 kHz frekans aralığında gerçekleştirilmiştir. Empedansın imajiner kısmı artan frekansla birlikte azalmıştır. Bu değişim Şekil 5.2'de görülmektedir. Burada 298–380 K sıcaklık aralığında bir pik ortaya çıkmıştır. Bu pik yüksek frekanslara doğru gidildikçe ortadan kalkmaktadır.

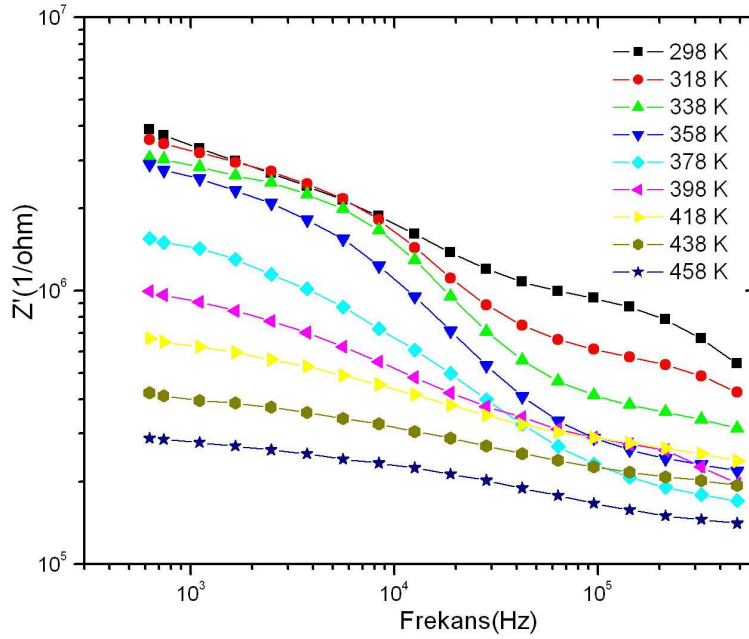


Şekil 5.2. TlGaSe₂ kristalinin empedansın imajiner kısmının sıcaklığa bağlılığı

5.1.3. Empedansın reel kısmının frekans bağımlılığı

TlGaSe₂ kristali için oda sıcaklığında [20] ve düşük sıcaklıklarda elektriksel özellikleri literatürde mevcuttur [28].

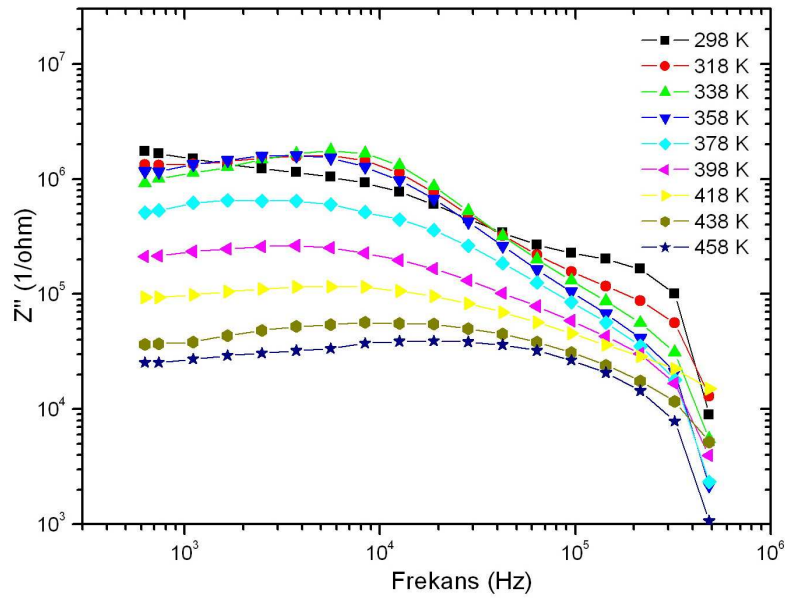
Bu çalışmada, kristalin oda sıcaklığının üzerindeki sıcaklıklarda empedans analizi yapılmıştır. Bu analiz, 100Hz–80kHz ve 298–468 K sıcaklık aralığında gerçekleştirilmiştir. Empedansın reel kısmının frekansa bağlı değişimi Şekil 5.3’de gösterilmiştir. Artan sıcaklık ve frekans ile birlikte empedansın reel kısmı azalmaktadır. Bu davranış dielektrikler için karakteristik bir özelliktir. Böyle bir davranış sergilemesi, o bölgede bir durulma olayı yani o aralıkta bir enerji kaybı olduğunu gösterir. Malzeme, Şekil 5.3’de görüldüğü üzere iki farklı durulma mekanizması ortaya koymuştur. Başlangıç sıcaklığından (298 K) itibaren frekans attıkça kompleks empedansın reel kısmının azaldığı görülmektedir. Bununla birlikte artan frekans ile 298–338 K sıcaklıkları arasında birinci durulma olayı ve daha yüksek frekanslara doğru gidildikçe aynı sıcaklık aralığında zayıfta olsa ikinci durulma olayı ortaya çıkmaktadır. Genel olarak düşük frekans aralığında gerçekleşen durulma olayı yüzey yüklerinin kutuplanmasından kaynaklanmaktadır. Frekansın artmasıyla birlikte meydana çıkan ikinci durulma olayı ise dipollerden meydana gelmektedir [21]. Sıcaklık arttıkça yüzey yüklerinin etkisi ortadan kalkmış ve 338–468 K sıcaklık aralığında bir tek durulma olayı görülmüştür. Fakat yüksek sıcaklıklarda durulma olayı tam olarak bitmemiştir. Bunun gözlemlenmesi için daha yüksek frekanslara ihtiyaç vardır.



Şekil 5.3. TlGaSe₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda empedansın reel kısmının frekansa bağlılığı

5.1.4. Empedansın imajiner kısmının frekans bağımlılığı

Kompleks empedansın imajiner kısmı aslında kayıp faktörü ifade eder. Diğer bir ifadeyle bu nicelik malzemedeki enerji kayıplarını sembolize etmektedir. Bu enerji kaybı bir pik olarak ortaya çıkar. Eğer bir pik ortaya çıkıyorsa faz geçişi olmuş demektir. Faz geçişi olması demek malzemenin minimum enerji durumunda olmak için direnmesi ve yapısında değişiklik olmasıdır. TlGaSe₂ kristali için bu değişim Şekil 5.4'de görülmektedir. İmajiner kısım için ölçümler, aynı frekans ve sıcaklık aralığında gerçekleştirilmiştir. 298–338 K sıcaklıkları arasında ve farklı frekans bölgesinde iki durulma olayına ait pikler görülmektedir. Yüksek sıcaklıklara doğru gidildikçe tek durulma olayı görülmektedir. Artan sıcaklıkla birlikte imajiner kısım azalmaktadır. İmajiner kısımdaki bu değişim, reel kısımda görülen durulma olayı ile aynı frekans ve sıcaklık bölgesinde ortaya çıkması, sonuçların birbiriyle tutarlı olduğunu göstermektedir.



Şekil 5.4. TlGaSe₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda empedansın imajiner kısmının frekansa bağlılığı

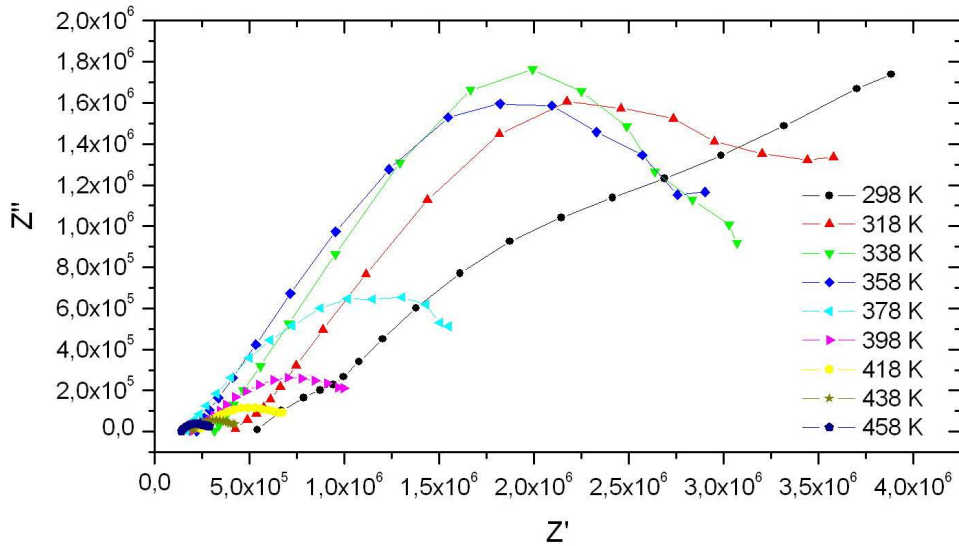
5.1.5. Empedansın reel kısmının imajiner kısmına bağlılığı

Durulma mekanizmalarını incelemek için kullanılan en kullanışlı metotlardan biri, Cole–Cole diyagramlarıdır. Bu diyagramlar ϵ'' 'ın ϵ' 'a bağlı olarak çizilen grafiklerinde ortaya çıkan eğrilerdir. Aynı şekilde durulma mekanizmasını, Z'' 'nın Z' 'a bağlı grafiklerinden de analiz etmek mümkündür. Genelde, durulma olayları grafikte bir yarım daire olarak ortaya çıkar.

Daha açık şekilde ifade etmek gerekirse dielektrik durulma, bir dielektrik malzemeye uygulanan \vec{E} alanına karşı sistemin bu etkiye hemen cevap veremeyişi ve denge durumuna gelme sürecidir. Durulma olayının başlaması ile bitişi arasında geçen zaman durulma zamanı olarak bilinir. Bir malzemede birden fazla durulma olayı gözlemek mümkündür.

TlGaSe₂ kristali için yapılan bu çalışmada, 298, 308 ve 318 K sıcaklıklarında çok küçükte olsa bir durulma olayı görülmektedir (Şekil 5.5). Bunun yanı sıra frekans arttıkça başka bir durulma olayı da sistemi etkilemektedir. 318–468 K sıcaklık aralığında ise sistemde sadece tek bir durulma olayı görülmektedir (Şekil 5.5). Fakat

bu aralıkta gerçekleşen durulma olayı tamamıyla bitmemiştir. Bunu gözlemlemek için daha yüksek frekanslara ihtiyacımız vardır.



Şekil 5.5. TiGaSe_2 kristalinin reel kısmının imajiner kısmına bağlılığı

Durulma olayının yanı sıra, önemli olan durulma zamanının tespit edilmesidir. Malzemenin sergilediği bu davranış doğrultusunda kompleks empedansı (5.1) eşitliğindeki şekliyle ifade edebiliriz.

$$Z^*(\omega) = \frac{R}{[1 + (i\omega\tau)^\alpha]} \quad (5.1)$$

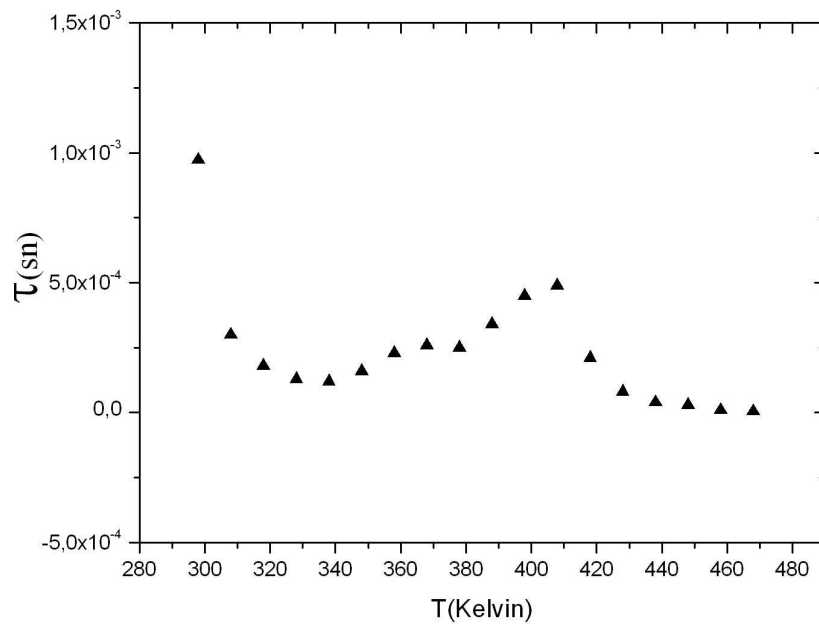
Bu eşitlik durulma zamanı dağılım fonksiyonunun simetrik genişlemesini ifade eder. (5.1) eşitliği reel ve imajiner kısımlarına ayrıldığında;

$$Z' = \frac{R [1 + (\omega\tau)^\alpha \sin((1-\alpha)\pi/2)]}{1 + (\omega\tau)^{2\alpha} + 2(\omega\tau)^\alpha \sin((1-\alpha)\pi/2)} \quad (5.2)$$

$$Z'' = \frac{R \left[(\omega\tau)^\alpha \cos((1-\alpha)\pi/2) \right]}{1 + (\omega\tau)^{2\alpha} + 2(\omega\tau)^\alpha \sin((1-\alpha)\pi/2)} \quad (5.3)$$

ifadeleri elde edilir [35].

Burada R, empedans eğrisinde düşük frekansın x eksenindeki karşılığıdır. α durulma parametresidir ve dağılım genişliğini verir. τ ise durulma zamanıdır. α ve τ parametrelerin değeri 0 ile 1 arasında değişmektedir. Bunun yanı sıra $\alpha=0$ durumunda durulma olayı Debye tipi olduğunu gösterir ve bu ise cole-cole diyagramının bir tam yarım daire olmasına karşılık gelir. Farklı sıcaklıklar için yapılan durulma zamanı hesaplamaları, (5.2) eşitliğinin empedansın reel kısmının frekansa bağlı çizilen grafiğine fit yaparak elde edilmiştir. Durulma zamanının sıcaklığa bağlı değişimi Şekil 5.6'da gösterilmiştir.



Şekil 5.6. Durulma zamanının sıcaklıkla değişimi

5.2. TlGaSe₂ Kristalinin İletkenlik Çalışması

5.2.1. A.C. iletkenliğin frekansa bağıllığı

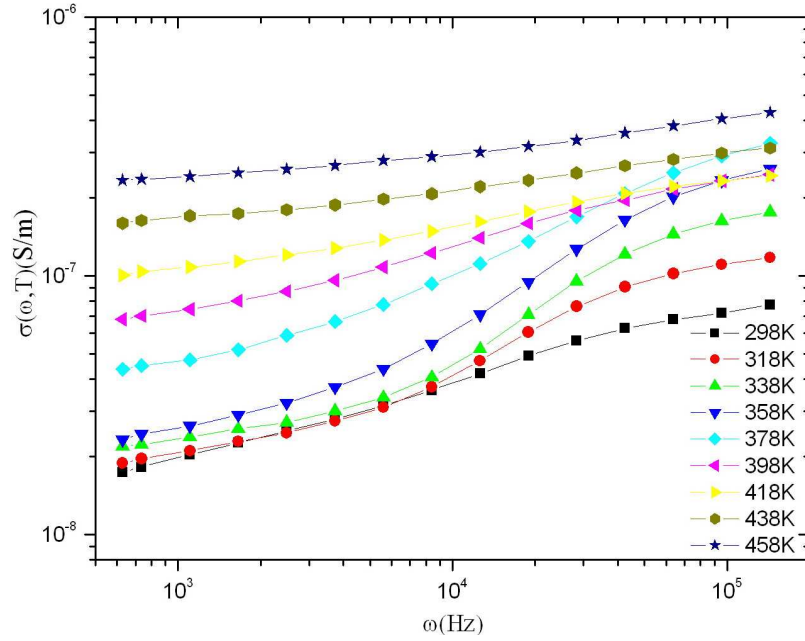
Bu bölümde, katmanlı kristal TlGaSe₂ için değişen frekans ve sıcaklık aralığında a.c iletkenlik çalışması yapılmıştır. Genel olarak, Şekil 5.7’de görüldüğü üzere malzemenin iletkenliği evrensel bir davranış sergilemiştir. Ölçümler, her bir sıcaklık için frekans taraması ile gerçekleştirilmiştir. Dikkat edilecek olursa, malzeme sabit bir sıcaklıkta frekans arttıkça belli bir noktaya kadar iletkenlikte kayda değer bir değişim olmamıştır. Fakat artan sıcaklıkla birlikte malzemenin iletkenliği belli bir noktadan sonra hızlıca artmaktadır. Bu davranış uygulanan frekans ile malzeme içindeki yük taşıyıcılarının sayısı ve iletkenliğe değişik mekanizmaların katkı vermesiyle açıklanır. Şekil 5.7’den görüldüğü üzere 298, 308 ve 318 K sıcaklıklarında malzemenin iletkenliğine iki farklı mekanizmanın katkıda bulunduğunu söyleyebiliriz. Fakat artan sıcaklık ve frekans ile iletkenliğe katkı bir tek mekanizma tarafından sağlanır. Yüksek sıcaklık ve frekanslara doğru gidildikçe bu mekanizma iletkenliğe katkıda bulunmaz. Bu davranışı sergileyen frekansa bağlı iletkenlik,

$$\sigma(\omega, T) = \sigma_{d.c}(T) + \sigma_{a.c}(\omega, T) \quad (5.4)$$

$$\sigma_{a.c}(\omega, T) = A(T) \omega^{s(T)} \quad (5.5)$$

eşitlikleri ile verilir.

Şekil 5.7’de göze çarpan bir diğer nokta iletkenliğin bir büküm noktasına sahip olmasıdır. Büküm noktasında yük taşıyıcıları sıçrama yaparlar. Bu büküm noktası sıcaklık arttıkça daha yüksek frekanslara kayar. Bunun sebebi, artan sıcaklıkla yük taşıyıcılarının kinetik enerjilerinin artması ve sıçrama için daha fazla enerji gerektiğidir. Bu enerji ancak yüksek frekanslara gidildikçe sağlanır.



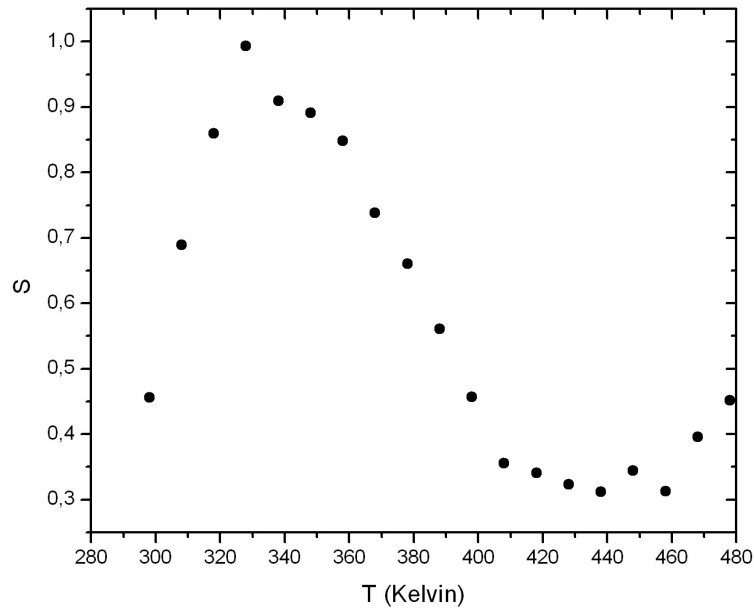
Şekil 5.7. TlGaSe₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda a.c iletkenliğinin frekansa bağlılığı

(5.6) eşitliğindeki $s(T)$, sıcaklığa bağlı önemli parametrelerden biridir. s parametresi, $0 \leq s \leq 1$ arasında değer alır. TlGaSe₂ kristali için farklı sıcaklıklardaki s parametresi, (5.6) eşitliğine fit yapılarak hesaplanmıştır. Sıcaklıkla değişen s değerleri Tablo 5.1’de verilmiştir.

Tablo 5.1. Farklı sıcaklıklarda ölçülen s değerleri

T(Kelvin)	s	T(Kelvin)	s
298	0.45622	388	0.56114
308	0.68928	398	0.45676
318	0.85951	408	0.35511
328	0.9936	418	0.34075
338	0.90949	428	0.32325
348	0.89079	438	0.31222
358	0.84827	448	0.34446
368	0.73844	458	0.31285
378	0.66059	468	0.39533

Burada s parametresinin sıcaklıkla değişiminde, ilk olarak çok küçük bir artış sonra artan sıcaklıkla birlikte düzgün bir şekilde azalma gözlenmiştir (Şekil 5.8). Buradaki davranış, kuantum mekanik tünelleme (QMT) ve enerji bariyeri ile özdeşleşmiş sıçrama (CBH) modelleri ile açıklanmaktadır.



Şekil 5.8. TlGaSe₂ kristalinin s parametresinin sıcaklığa bağlılığı

5.2.1.1. Kuantum mekanik tünelleme modeli (QMT)

Şekil 5.8'de 320 K sıcaklığına kadar olan bölgede artan bir eğilim normal olarak QMT modeline işaret eder. Ancak iletkenlik mekanizmasının bu bölgedeki bu davranışı, çok az sıcaklık noktasında elde edilmiş sonuçlar olduğu için bu model çerçevesinde incelenmeyecektir. Bu sıcaklıktaki doğruluğu için daha fazla sıcaklık noktasında aynı deneyler gerçekleştirilmelidir.

5.2.1.2. Enerji bariyeri ile özdeşleşmiş sıçrama modeli (CBH)

Bu model ilk defa Pike tarafından öne sürülmüş, Elliot tarafından geliştirilmiştir. Bir enerji bariyeri ile ayrılmış iki band arasında bir sıçrama konsepti üzerine kurulmuş modeldir.

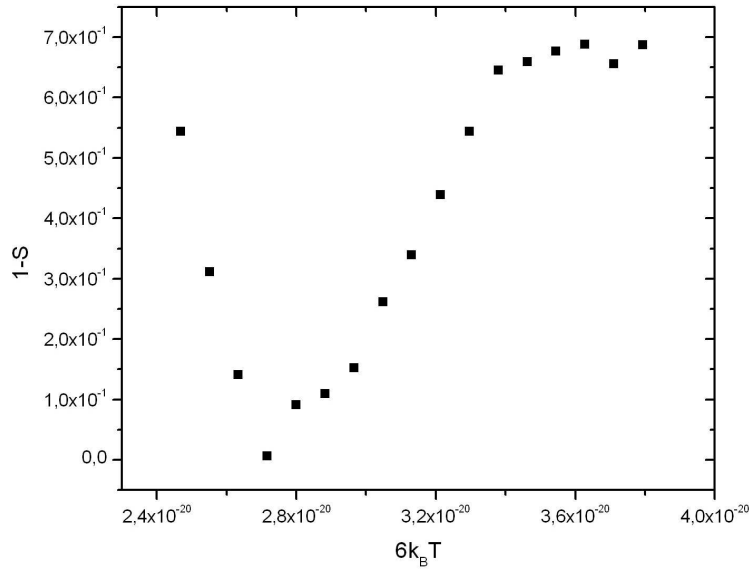
Sıcaklıkla deęişim gösteren s parametresi, ölçülen malzeme ile ilgili olarak karakteristik bazı özellikleri ortaya koyar. Bunlardan en önemlileri; bariyer yükseklięi W_H , sıçrama mesafesi R_H ve durum yoğunluęu N 'dir. CBH modelinin iletkenlięe yaklařımı;

$$\sigma_{AC}(\omega) = \frac{\pi^3}{24} N^2 \epsilon \epsilon_0 \omega R_H^6 \quad (5.6)$$

$$R_H = \frac{e^2}{\pi \epsilon \epsilon_0 [W_H - k_B T \ln(1/\omega \tau_0)]} \quad (5.7)$$

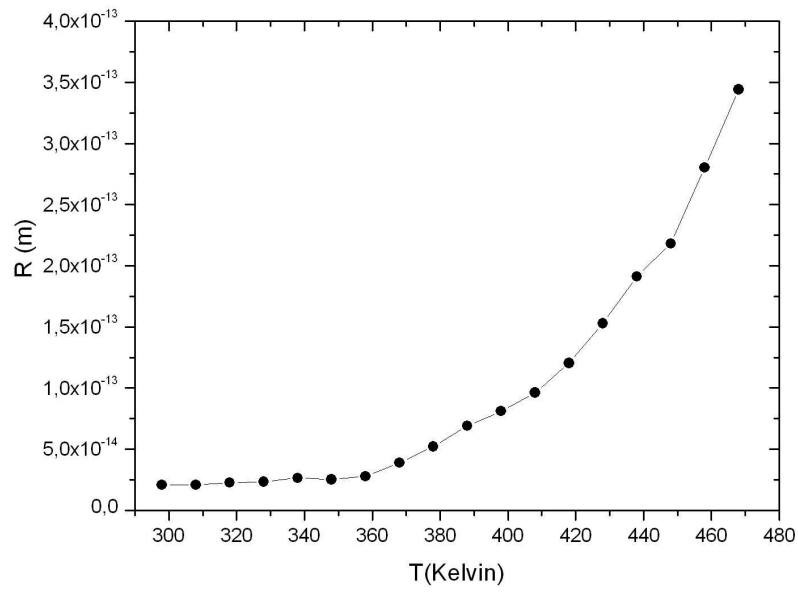
$$s = 1 - \frac{6k_B T}{[W_H - k_B T \ln(1/\omega \tau_0)]} \quad (5.8)$$

eřitlikleri ile ifade edilir. Burada ϵ_0 , bořluęun dielektrik sabiti, ϵ ise malzemenin dielektrik sabitidir. τ_0 ise malzemenin karakteristik durulma zamanıdır. Bu modele göre s parametresi, (5.8) eřitlięi ile tutarlı olmalıdır. Burada W_H bariyer yükseklięi, $(1-s) \cdot (6k_B T)$ karřı çizilen grafięin eęiminden hesaplanmış ve deęeri 0,0713 eV bulunmuřtur. Bu deęişim Şekil 5.9'da gösterilmiřtir



Şekil 5.9. TI GaSe₂ kristalinin $(1-s)-(6k_B T)$ değişimi

Bunun yanı sıra, bu çalışmada bariyer yüksekliğinden sonra bizim için önemli olan ikinci parametre R_H sıçrama mesafesidir. Burada sıcaklık analizi, 298–468 K sıcaklık aralığında yapılmıştır. Sıçrama mesafesinin sıcaklığa bağlı değişimi, Şekil 5.10’da gösterilmiştir. Ayrıca tüm sıcaklık aralığındaki sıçrama mesafesi değerleri Tablo 5.2’de verilmiştir. Buradan görülüyor ki; yüksek sıcaklıklara doğru gidildikçe sıçrama mesafesi artmıştır. Sıçrama mesafesinin artması, yük taşıyıcılarının daha fazla enerjiye sahip olmasından kaynaklanır. Bu enerji ancak yüksek sıcaklıklara doğru gidildikçe artar.



Şekil 5.10. TlGaSe₂ kristalinin sıçrama mesafesinin sıcaklıkla değişimi

Tablo 5.2. TlGaSe₂ kristalinin farklı sıcaklık aralığında sıçrama mesafesi değerleri

T (Kelvin)	R_H (m)	T (Kelvin)	R_H (m)
298	2.072E-14	388	6.9067E-14
308	2.0881E-14	398	8.1155E-14
318	2.2635E-14	408	9.6319E-14
328	2.3491E-14	418	1.2033E-13
338	2.6408E-14	428	1.529E-13
348	2.5332E-14	438	1.9122E-13
358	2.7865E-14	448	2.1811E-13
368	3.9038E-14	458	2.8031E-13
378	5.2134E-14	468	3.4416E-13

BÖLÜM 6. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışma 298–468 K sıcaklık aralığında ve 100 Hz–80 kHz frekans aralığında yapılmıştır. Deneysel çalışma sonucunda elde edilen sonuçlar aşağıdaki gibi açıklanır:

Empedansın reel kısmı artan sıcaklık ve frekans ile birlikte azalma gösterdi. 298- 338 K sıcaklıkları arasında birinci durulma olayı, aynı sıcaklık aralığında daha yüksek frekanslara doğru gidildikçe ikinci durulma olayı gözlemlendi. 338–468 K sıcaklık aralığında birinci durulma olayı bu frekans aralığında kendini tamamlayamamıştır. Burada birinci durulma olayı yüzey yüklerinden, yetersiz frekans aralığından dolayı tamamlanmayan ikinci durulma olayı ise dipol durulmasından meydana geldiği tahmin edilmektedir. Empedansın imajiner kısmı değişen frekans aralığında bir pik ortaya koyar. Böyle bir davranış sergilemesi, o bölgede bir durulma olayı yani o aralıkta bir enerji kaybı olduğu doğrular. 298–338 K sıcaklıkları arasında ve iki farklı frekans bölgesinde iki durulma olayına ait pikler görülmektedir.

Empedansın reel kısmının imajiner kısmına karşı çizilen grafiğinden Cole-Cole diyagramları elde edildi. Literatürde mevcut olan Z' ve Z'' formülasyonlarını deneysel datalara fit ederek her sıcaklık için τ durulma zamanı değerlerini hesaplandı. Durulma olaylarının gerçekleştiği sıcaklıklarda durulma zamanının arttığı gözlemlendi.

Malzemenin iletkenlik ölçümleri her bir sıcaklık için gerçekleştirildi. Malzemenin iletkenliğinde başlangıçta frekans attığına rağmen bir değişim olmadı. Sıcaklığın artmasıyla iletkenlik hızlı bir artış gösterdi. Bu davranış uygulanan frekans ile malzeme içindeki yük taşıyıcılarının sayısının artmasıyla açıklandı. Sergilenen bu davranış genel güç kanunu ile açıklandı. Deneysel dataları iletkenlik eşitliğine fit edilerek sıcaklığa bağlı “s(T)” parametresi hesaplandı.

's' parametresinin sıcaklığa bağılı çizilen grafiğı azalan bir eğilim göstermesi sonucu iletkenlik mekanizması CBH modeli ile açıklandı. Grafiğın eğiminden W_H sıçrama yüksekliğinin değeri, 0,0713 olarak hesaplandı. Ayrıca her bir sıcaklık için R_H sıçrama mesafesi değeri hesaplandı. R_H değeriğinin sıcaklık arttıkça artış göstermesi yük taşıyıcılarının daha fazla enerjiye sahip olmasıyla açıklandı. Bu değeriğın 10^{14} mertebelerinde olduğı belirlendi.

KAYNAKLAR

- [1] BALTA, C., Fe³⁺ Atomları ile Katkılandırılmış TlInS₂ ve TlGaSe₂ Ferroelektrik Kristallerinin Dielektik Özellikleri, Yüksek Lisans Tezi, GYTE, 2004
- [2] YEE, K.A., ALBRİGHT, A., J. Am. Chem. Soc. 113, 6474, 1991
- [3] HANİAS, M.P., ANAGNOSTOPOULOS, A.N., KAMBAS, K., J.Spyridelis, Mater. Res. Bull. 27, 25, 1992
- [4] ABDULLAEVA, S.G., BELENKİİ, G.L., MAMEDOV, N.T., Sov. Phys. Semicond. 15, 540, 1981
- [5] AVCILAR, Z., Katmanlı TlInS₂'nin Faz Geçişleri Etrafında Durulma Özellikleri, Yüksek Lisans Tezi, İTÜ, 1997
- [6] GÜRDULAK, B., PhysicaB 293, 289-296, 2001
- [7] MİKAİLOV, F.A., RAMEEV, B.Z., KAZAN, S., YILDIZ, F., MAMMADOV, T.G., AKTAŞ, B., Solid State Communications 133, 389–392, 2005
- [8] SEYİDOV, M.Yu., KERİMOVA, E.M., VELİYEV, R.K., KERİMOV, R.N., MİKAİLOV, F.A., Journal of Alloys and Compounds 234, 117–123, 2007
- [9] LEDERER, P., MONTAMBAUX, G., JAMET, J. P., CHAUVİN, M., J. Phys. Lett., 45 L627, 1984
- [10] LEDERER, P., MONTAMBAUX, G., JAMET, J. P., Ferroelectrics, 66 25, 1986
- [11] FOLCÍA, C. L., TELLO, M. J., PEREZ-MATO, J. M., Phys. Rev. B 36, 7181, 1987
- [12] FOLCÍA, C. L., TELLO, M. J., PEREZ-MATO, J. M., Phys. Rev. B 38, 5055, 1988
- [13] ŞENTÜRK, E., Physics Letters A 349, 340–344, 2006

- [14] PANİCH, A.M., AİLİON, D.C., KASHİDA, S. ve GASANLY, N., *Physical Review B* 69, 245319, 2004
- [15] YÜKSEK, N. S., GASANLY, N. M., *Cryst. Res. Technol.* 40, No. 3, 264 – 270, 2005
- [16] PANİCH, A.M., AİLİON, D.C., KASHİDA, S. ve GASANLY, N., *Physical Review B* 69, 245319, 2004
- [17] MİKAİLOV, F.A., BAŞARAN, E., ŞENTÜRK, E., TÜMBEK, L., ALİYEYEV, V.P., *Phase Transition*, 76 (12), 1057, 2003
- [18] MİKAİLOV, F., ŞENTÜRK, E., BAŞARAN, E., MAMMADOV, T.G., SEYİDOV, M.Yu., *Balkan Phys. Lett.* 10 (3), 124, 2002
- [19] MİKAİLOV, F.A., BAŞARAN, E., ŞENTÜRK, E., TÜMBEK, L., ALİYEYEV, V.P., *Solid State Commun.* 129, 761, 2004
- [20] OKUTAN, M., AZAK, F., ŞAHİN, P., ÇANDARLI, M., ERDEM, Z., ŞENTÜRK, E., *Cryst. Res. Technol.* 42, No. 11, 1132 – 1136, 2007
- [21] ELİSSALDE, C., ve RAVEZ, J., *J. Mater. Chem.*, 11, 1957-1967, 2001
- [22] MUSTAFAEVA, S. N., ALİEV, V. A., ve ASADOV, M. M., *Fiz. Tverd. Tela*, 40, 48-51, 1998
- [23] ALDZHANOV, M. A., GUSEİNOV, N. G., MAMEDOV, Z. N., *Phys. Stat. Sol.*, 100, K1 45, 1987
- [24] DUTTA, S., BHATTACHARYA, S., AGRAWAL, D.C., *Materials Science and Engineering B* 100, 191-198, 2003
- [25] BENNANI, F., HUSSON, E., *Journal of European Ceramic Society*, 21, 847-854, 2001
- [26] SUMANA, C.K., PRASAD, K., CHOUDHARY, R.N.P., *Materials Chemistry and Physics* 187, 491–496, 2005
- [27] PİROVANO, C., STEİL, M.C., CAPOEN, E., NOWOGROCKİ, G., VANNİER, R.N., *Solid State Ionics* 176, 2079 – 2083, 2005
- [28] ALAKHVERDİEV, K. R., SALAEV, F. M., MİKAİLOV, F. A., MAMEDOV, T. S., *Fiz. Tverd. Tela* 34, 3615–3617, 1992
- [29] EL-NAHASS, M.M., SALLAM, M.M., RAHMAN, S.A., İBRAHİM, E.M., *Solid State Sciences* 8, 488–499, 2006

- [30] ALAKHVERDİEV, K. R., SALAEV, F. M., MİKAILOV, F. A., MAMEDOV, JET Lett. 56, 153, 1992
- [31] ŞENTÜRK, E., TlInS_2 ve TlGaSe_2 Katmanlı Ferroelektrik Kristallerinde Faz Geçişleri ve Dielektrik Özelliklerin İncelenmesi, Doktora Tezi, GYTE, 2004
- [32] SALAEV, F. M., ALAKHVERDİEV, K. R., MİKAILOV, F. A., Ferroelectrics, 131, 163, 1992
- [33] GAUTAM, S., Electrical and Photo-Electrical Properties of Pure and Doped Chalcogenide Semiconductors, Panjab Üniversitesi, Doktora Tezi, 2006
- [34] MANSFELD, F., Electrochimica Acta, 35, 1533, 1990
- [35] SONG, C. H., CHOI, H. W., KİM, J. E., LEE, J. K., KİM, S. J., YANG, Y. S., Journal of the Korean Physical Society, 167-170, 2005

ÖZGEÇMİŞ

Fatma AZAK, 10.09.1983 Rize’de doğdu. İlk ve orta öğrenimini İstanbul Bağlarbaşı İlköğretim Okulu’nda tamamladı. Lise öğrenimini 1998–2001 yılları arasında Yabancı Dil Ağırlıklı Rize Fener Lisesi’nde tamamladı. 2002 yılında Sakarya Üniversitesi Fizik Bölümünde öğrenimine başladı ve 2006 yılında mezun oldu. Aynı yıl içerisinde Sakarya Üniversitesi, Fizik Bölümü, yüksek lisans öğrenimine başladı. Halen yüksek lisans öğrenimine devam etmektedir.