FIZIKA-MATEMATIKA

Rasulova Marxabo Botirjon qizi (Andijon davlat universiteti, PhD),
Madaminova Zarnigor Shuhratbek qizi (ADU, talaba),
Doniyorbekova Gulxayobonu Doniyorbek qizi (ADU, talaba)

NIKEL BILAN LEGIRLANGAN RUX OKSIDI NANOMATERIALINING AYRIM FIZIK XUSUSIYATLARI

Annotatsiya. *Ushbu tadqiqotda sprey-piroliz usuli yordamida sintez qilingan nikel bilan legirlangan rux oksidi (ZnO:Ni) yupqa plyonkalarining strukturaviy, elektr va optik xususiyatlariga legirlanish darajasining ta'siri o'rganildi. Rentgen nurlar difraksiyasi (XRD) natijalari plyonkalar polikristall tuzilishga ega ekanligini, sof ZnO hamda 1 at. % Ni legirlangan namunalar uchun eng kuchli difraksion cho'qqi (002) yo'nalishiga to'g'ri kelishini ko'rsatdi. Ni konsentratsiyasi 3 va 5 at. % gacha oshirilganda, asosiy kristallografik yo'nalishning (002) tekisligidan (101) tekisligiga siljishi kuzatildi, bu esa struktura tartibining o'zgarishini tasdiqlaydi. Elektrik o'lchovlar natijalariga ko'ra, Ni qo'shimchasi plonkalar elektr qarshiligining sezilarli kamayishiga olib keladi. Barcha namunalar n-tipli yarimo'tkazgich xususiyatini namoyon etib, tok tashuvchilar konsentratsiyasi ~10^{18} sm^{-3} atrofida ekanligi aniqlandi.*

Kalit so'zlar: *metall oksidi, yupqa plonka, sprey piroliz, polikristall, legirlash, kristall tuzilishi.*

Расулова Мархабо Ботиржоновна (АГУ, PhD),
Мадаминова Зарнигор Шухратбек кизи (АГУ, студентка),
Дониёрбекова Гулхайёбону Дониёрбек кизи (АГУ, студентка)

НЕКОТОРЫЕ ФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ЛЕГИРОВАННОГО НИКЕЛЕМ ОКСИДА ЦИНКА НАНОМАТЕРИАЛА

Аннотация. *В данном исследовании изучено влияние степени легирования никелем на структурные, электрические и оптические свойства тонких пленок оксида цинка (ZnO:Ni), синтезированных методом спрей-пиролиза. Рентгенодифракционный анализ (XRD) показал, что полученные пленки обладают поликристаллической структурой; для чистого ZnO и образцов, легированных 1 ат. % Ni, наиболее интенсивный дифракционный пик соответствует плоскости (002). При увеличении концентрации Ni до 3 и 5 ат. % наблюдается смещение предпочтительной ориентации от плоскости (002) к плоскости (101), что свидетельствует об изменении структурного порядка. Электрические измерения показали, что введение Ni приводит к значительному снижению электрического сопротивления пленок. Установлено, что все образцы проявляют n-тип проводимости, а концентрация носителей заряда составляет порядка ~10^{18} $см^{-3}$.*

Ключевые слова: *оксид металла, тонкая пленка, спрей-пиролиз, поликристалл, легирование, кристаллическая структура.*

Rasulova Markhabo Botirjon qizi (Andijan State University, PhD),
Madaminova Zarnigor Shuhratbek qizi (ASU, student),
Doniyorbekova Gulxayobonu Doniyorbek qizi qizi (ASU, student)

SOME PHYSICAL PROPERTIES OF NICKEL-DOPED ZINC OXIDE NANOMATERIAL

Annotation. *In this study, the effects of nickel doping on the structural, electrical, and optical properties of zinc oxide (ZnO) thin films synthesized by the spray pyrolysis method were investigated. X-ray diffraction (XRD) analysis confirmed that all films exhibit a polycrystalline nature. The strongest diffraction peak for pure ZnO and 1 at. % Ni-doped films corresponds to the (002) plane, whereas increasing the Ni content to 3 and 5 at. % leads to a preferred orientation shift from the (002) to the (101) plane, indicating structural reorganization within the lattice. Electrical measurements revealed that Ni incorporation significantly reduces the electrical resistivity compared to undoped ZnO. All samples demonstrated n-type semiconducting behavior with a carrier concentration on the order of ~10^{18} cm^{-3}.*

Key words: *metal oxide, thin film, spray pyrolysis, polycrystalline, doping, crystal structure.*

Kirish. Hozirgi kunda metall oksidli yupqa plonkalar, xususan rux oksidi (ZnO), ko'rinadigan va ultrabinafsha diapazonda nurlanish chiqaruvchi yarim o'tkazgich qurilmalarini yaratish uchun istiqbolli materiallardan biri hisoblanadi. Bu, avvalo, ZnO ning 3,37 eV kenglikdagi taqiqlangan soha energiyasiga, shuningdek, elektron va kovaklar uchun yuqori harakatchanlikka ega ekani bilan izohlanadi [1;5–11-b.]. Legirlash jarayoni mazkur materialning fizik xossalariga sezilarli darajada ta'sir ko'rsatishi, xususan, taqiqlangan soha kengligi va elektr o'tkazuvchanlikni o'zgartirishi mumkin. ZnO asosidagi yupqa plonkalar

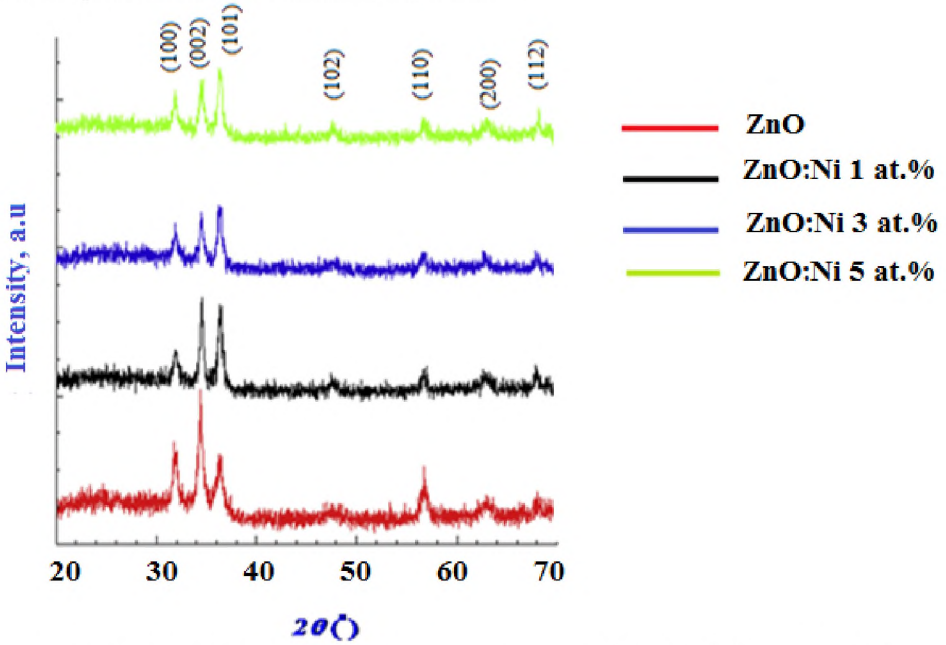
tomonidan namoyish etiladigan ushbu xususiyatlar quyosh elementlari, optoelektronika va sensor qurilmalarini ishlab chiqishda juda muhimdir.

O‘tkazilgan tadqiqotlar shuni ko‘rsatadiki, o‘tish metallari bilan legirlash jarayonida yuqori haroratdagi diffuziya natijasida yuzaga keladigan nuqsonlar ZnO ning elektrofizik xususiyatlariga sezilarli ta’sir ko‘rsatadi. Shuningdek, tashqi omillar – harorat, bosim va nurlanish ta’sirida o‘tish metallari atomlari tomonidan hosil bo‘ladigan klasterlarning holati hamda ularning xatti-harakati ZnO ning elektrofizik parametrlarini boshqarish nuqtayi nazaridan alohida ilmiy va amaliy ahamiyatga ega [2;330–334-b.].

Rux oksidi legirlash turiga qarab n-tipli yoki p-tipli o‘tkazuvchanlikni namoyish qilishi mumkin. ZnO plonkalarini III guruh elementlari, o‘tish metallari yoki nodir yer elementlari bilan legirlash ularning fizik va kimyoviy xossalarini sezilarli darajada o‘zgartiradi va natijada turli xil amaliy qurilmalarda qo‘llanish imkoniyatini oshiradi. Shunga qaramay, ZnO plonkalarining struktura shakllanishi va ularning barqaror ishlashi legirlovchi atomlarning konsentratsiyasiga qanday bog‘liqligi hali to‘liq o‘rganilmagan. Shu bois ushbu tadqiqotda ZnO plonkalarini nikel (Ni) atomlari bilan legirlashning optimal sharoitlarini aniqlash hamda ZnO va turli konsentratsiyadagi Ni (1 at. %, 3 at.% va 5 at.%) qo‘shilgan plonkalarining rentgen difraksion tahlili keltiriladi.

Materiallar va usullar. Zol eritmasini tayyorlashda rux asetat (Zn $(CH_3\ COO)_2 \cdot 2H_2O$) prekursor sifatida, izopropil spirt ($CH_3CH(OH)CH_3$) esa erituvchi sifatida qo‘llanildi. Dietilamin ($C_4H_{11}N$) nikel atsetat [$Ni(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$] bilan birgalikda stabilizator vazifasini bajardi. 1 g sink asetat va 0,013–0,065 g (1 at. %, 3 at.% va 5 at.%) nikel atsetat 100 ml izopropil spirtida eritildi. Hosil bo‘lgan aralashma 60°Cda 1500 ayl/min tezlikda magnit aralashtirgich yordamida to‘liq shaffof holga kelguncha aralashtirildi. Nikel asetatning suvli eritmada gidrolizlanishining oldini olish maqsadida 1 ml xlorid kislota qo‘shildi. Aralashma xona haroratida 30 daqiqa davomida aralashtirildi. Strukturaviy tahlillar XRD-6100 difraktometri yordamida amalga oshirildi. Tahlil jarayonida quvvat 40 kV, tok kuchi 30 mA, skanerlash diapazoni 20–80°, skanerlash tezligi 2°/min va qadam o‘lchami 0,02° etib belgilandi. Nikel bilan legirlangan ZnOning elektr xossalari, ya’ni, elektr qarshiligi, tok tashuvchilar konsentratsiyasi va ularning harakatchanligi Vander-Pau usuli hamda 0,63 T magnit maydon kuchiga ega Xoll effekti uskunasi yordamida o‘lchandi.

Natijalar va muhokama. ZnO va turli konsentratsiyadagi Ni legirlangan (1 at.%, 3 at.% va 5 at.%) ZnO:Ni yupqa plonkalarining XRD natijalari 1-rasmda keltirilgan. Difraksion tasvirlarda turli intensivlikdagi sochilishlar va bir qator diffuz aks ettirishlar kuzatildi.



1-rasm. ZnO va ZnO:Ni yupqa plonkalari uchun XRD difraksion spektrlari.

Ayniqsa, uchta asosiy kristallografik yo‘nalish (100), (002) va (101) uchun yuqori intensivlikdagi chiziqlar qayd etildi. Mos ravishda, (100) yo‘nalish – $2\theta = 31{,}42°$ ($d = 0{,}2776$ nm); (002) yo‘nalish – $2\theta = 34{,}48°$ ($d = 0{,}2582$ nm); (101) yo‘nalish – $2\theta = 36{,}34°$ ($d = 0{,}250$ nm). Eng yuqori ($\sim 10^5$ imp$\cdot$s^{-1}) intensivlik (002) tekisligiga to‘g‘ri kelishi va ushbu cho‘qqining torligi (FWHM = $3{,}6 \cdot 10^{-3}$ rad) plyonkada kristallik darajasining yuqoriligidan dalolat beradi. Ushbu cho‘qqi asosida tekis ZnO plyonkasining panjara konstantalari a = b = 3,265 Å va c = 5,212 Å ekani aniqlandi. Bu natijalar ZnO ning C6/mmc fazo guruhiga

mansub vürtsit tuzilishga ega ekanini tasdiqlaydi. Legirlash ta'sirida XRD spektrida bir qator o'zgarishlar kuzatildi. Legirlangan namunalar uchun fon darajasining pasayishi Ni atomlarining ZnO panjarasida tartibsiz tarqalishini kamaytirayotganini ko'rsatadi. 1–5 at. % Ni konsentratsiyasida asosiy difraksion cho'qqilar bir oz kichik burchak tomon siljidi: $\Delta a = 0{,}05°$, $\Delta c = 0{,}011°$. 5 at. % Ni uchun (100) va (101) yo'nalishlarining intensivligi, mos ravishda, 15,9% va 31,9% ga oshdi. Bundan tashqari, (102), (110), (200) va (112) yo'nalishlar, mos ravishda, 47,55°, 56,77°, 62,82° va 68,00°da kuzatildi. Ni konsentratsiyasi oshganda (002) ustun yo'nalishi asta-sekin susayib, 3 at. % va 5 at.% namunalar uchun asosiy ustun yo'nalish (101) tekisligiga o'tgani aniqlandi. ZnO:Ni spekterlarida Ni yoki NiO ikkilamchi fazalarining yo'qligi Ni^{2+} ionlarining Zn^{2+} ionlari o'rniga panjaraga muvaffaqiyatli joylashayotganini ko'rsatadi [3;7729-b.]. XRD tasvirlari yana shuni ko'rsatadiki, plyonkalar yaxshi kristallanishga ega, kristalitlar turli tekisliklarga yo'naltirilgan. Birlamchi cho'qqi pozitsiyalari 2θ qiymatlarida 31.95°, 34.51° va 36.42 ikkilamchi tepaliklar esa 46.56°, 56.09°, 63.11° va 68.32°da joylashgan. Shunisi e'tiborga loyiqki, (002) aks ettirishning intensivligi ZnO va 1 at.% ZnO:Ni plyonkalari uchun eng yuqori bo'lib, bu namunalar uchun (002) tekisligida imtiyozli yo'nalishni taklif qiladi. Aksincha, 3 va 5 at. % ZnO:Ni yupqa plyonkalar uchun imtiyozli yo'nalish (101) tekislikka o'tadi. Bundan tashqari, skanerlash oralig'ida Ni yoki uning oksidlarining ikkilamchi fazalari aniqlanmagan, bu Ni ZnO panjarasidagi Zn joylarini samarali ravishda almashtirishini ko'rsatadi.

Nikel bilan legirlangan ZnO yupqa plyonkalarida hosil bo'lgan panjara nuqsonlari sintez qilingan namunalarning tuzilmaviy parametrlaridagi o'zgarishlari tahlil qilindi (1-jadval). Xona haroratida o'stirilgan plyonkalarning panjara doimiylari (a,b,c) quyidagi ifoda yordamida aniqlandi:

$$a = b = \frac{\lambda}{\sqrt{3}\sin\theta} \text{ va } c = \frac{\lambda}{sin\theta} \quad (1)$$

Hisoblangan panjara doimiylari va ularning nisbati "c/a" 1-jadvalda keltirilgan. Panjara parametrlarining olingan qiymatlari, "a" va "c" o'qlari uchun vurtsit kristall tuzilishiga mos ekanligini ifodalaydi [4; 197–205-b.]. "c/a" nisbati esa legirlangan atomlarning ZnO kristall panjarasiga muvaffaqiyatli kiritilishi mumkinligini tasdiqlaydi. O'stirilgan kristalit o'lchami qiymatlari pastki chegaradagi taxminlar hisoblanadi. XRDda kuzatilgan diffuzion aks ettirishlar va nisbiy intensivlikni ZnO kristalli tuzilishining standart qiymati bilan solishtirgan holda (JCPDS kartasi No. 01-089-0510) ZnO:Ni plyonkalarining tuzilmaviy parametrlari ham hisoblanib, natijalar 1-jadvalga kiritildi.

1-jadval

ZnO:Ni plonkalarining tuzilmaviy xarakteristikalari

Namunalar	Kristallografik yo'nalish (002), (2θ),()	Panjara doimiylari			Kristallit o'lchami D, nm
		a=b, (Å)	c,(Å)	c/a	
ZnO	34.48	3.265	5.212	1.59	39.5
ZnO:Ni 1 at.%	34.59	3.265	5.208	1.6	34.6
ZnO:Ni 3 at.%	34.56	3.264	5.206	1,6	38.8
ZnO:Ni 5 at.%	34.53	3.263	5.203	1.6	41.4

Tahlillar shuni ko'rsatdiki, nikel qo'shilgan namunalar miqdori legirlanmagan sink oksidiga nisbatan kamaygan. O'stirilgan kristallitlarning o'lchami Debye-Sherrer formulasi yordamida hisoblanadi:

$$D = \frac{k\lambda}{\beta cos\theta} \quad (2)$$

bu yerda: λ-0,154 nm.ga teng nurlanish to'lqin uzunligi, θ-difraksiya kuzatiluvchi burchak (yarim kenglik difraksiya burchagi 2θ), β-diffraksiya chiziqning fizik kengayishi (FWHM- maksimal intensivelikda reflekslarning yarim kengligi), koeffitsiyent k≈0,91. (2) ifodasidan foydalanib, subkristallitlarning o'lchamlarini aniqlashga imkon beradi, ular, dastlab, Ni bilan legirlash 1% bo'lganda, kamaygan (D_{ZnO} = 39,5 nm, va $D_{ZnO:Ni\ 1at.\%}$ = 34,6 nm), keyin esa nikel konsentratsiyasi oshishi bilan subkristallitlarning o'lchamlari ham oshgan ($D_{ZnO:Ni\ 3at.\%}$=38,8 nm va $D_{ZnO:Ni\ at.\%}$=41,4 nm). Ushbu tuzilmaviy parametrlarining tajribaviy qiymatlari asosida shunday xulosa qilish mumkin. ZnO ni nikel atomlari bilan legirlanishi 1 % gacha bo'lgan miqdorda plonkalarning kristallik darajasini oshiradi, lekin nikel atomlari 3% dan yuqori bo'lsa, bu daraja pasayadi. 1-jadvaldan shuni ko'rish mumkinki, Ni:ZnO namunalarining kristallit o'lchami nikel konsentratsiyasi oshishi bilan oshadi, bu esa yuqori konsentratsiyalarda nikel atomi nuqson sifatida kristall panjara tugunlarida joylashib, kristallik xossasini pasaytirayotganini bildiradi. Nikel konsentratsiyasi 1% bo'lgan holatda, eng yaxshi kristallik xususiyatini namoyon qildi. Ni^{2+} (0.69 Å) va Zn^{2+}(0.74 Å) ionlarining ion radiuslari juda yaqin bo'lib, ular bir xil valentlikka va bir xil tuzilishga ega bo'lgani uchun

Ni^{2+}ning Zn^{2+} bilan oson almashtiriladi, bu ZnO kristall tarmog‘ining geksagonal strukturasini o‘zgartirmaydi.

ZnO:Ni metalloksidi plonkalari uchun eng past qarshilik va yaxshi chiziqli kontaktlar kumush (Ag) dan 150^0C haroratda toblanish orqali olingan. Tayyorlangan ZnO:Ni metalloksidi yupqa qatlamlarining elektr xossalari xona haroratida Van der Pau usulida o‘rganildi va o‘tkazuvchanlik turi termik zond bilan, shuningdek, Xoll metodi bilan aniqlandi. Metall oksidi qatlamlari, asosan, o‘tkazuvchanlikning n-tipli ekanligi aniqlandi. ZnO:Ni yupqa yupqa qatlamlarning elektr o‘tkazuvchanligini aniqlash uchun to‘rt zond usuli yordamida 450 Kgacha o‘zgarishi o‘lchandi, u qatlamlarning solishtirma qarshiligini (3) ifoda yordamida aniqlandi:

$$\rho = \frac{\pi \cdot d}{\ln 2} \cdot \frac{R_1 + R_2}{2} \cdot f \quad (3)$$

Tadqiqoqt natijalariga ko‘ra, Ni konsentratsiyasi oshishi bilan qarshilik kamaya borishini ham ko‘rishimiz mumkin. Bu esa Ni donor xususiyatga ega ekanligini bildiradi. Shuni ta’kidlash kerakki, Ni qo‘shilgan namunalar uchun elektr qarshiligi sof ZnO ga qaraganda pasaygan. ZnO:Ni ning xona haroratida elektrik xarakteristikalari 2-jadvalda keltirilgan.

2-jadval

ZnO:Ni plonkalarining elektrik xarakteristikalari

№	Namunalar	Solishtirma qarshilik, $\rho(\Omega \cdot sm)$	Tok tashuvchilar konsentratsiyasi sm^{-3}	Harakatchanlik, $\mu(sm^2V^{-1}s^{-1})$	O‘tkazuvchanlik turi
1	ZnO	0,69	$1.19 \cdot 10^{18}$	7,61	n
	ZnO:Ni 1at.%	0.58	$1.9 \cdot 10^{18}$	5.72	n
2	ZnO:Ni 3at.%	1.24	$7.9 \cdot 10^{17}$	6.31	n
3	ZnO:Ni 5at.%	2.38	$6.3 \cdot 10^{17}$	4.14	n

Legirlash tufayli qarshilikning pasayishi tushunarli holat, chunki ba’zi Zn^{2+} atomlari Ni^{2+} atomi bilan almashtiriladi, bu Ni ni 3d qobig‘i to‘liq bo‘lmagan ($3d^8$) va o‘tkazuvchanlik sohasining pastki qismiga yaqin holatlardagina almashinishi mumkin. O‘tkazuvchanlik zonasi holatlarining bunday qo‘shilishi ko‘proq elektronli o‘tkazuvchanlikni ta’minlaydi va qarshilikni pasaytiradi.

Xulosa. O‘tkazilgan eksperimental tadqiqotlar va olingan natijalarni tahlil qilish asosida quyidagi xulosalar chiqarish mumkin: O‘tirilgan ZnO plonkalarining yuzasi kristallografik yo‘nalishni (002) namoyon etishi va o‘lchamlari 39,5 nm bo‘lgan bloklardan iborat bo‘lib, parametrlari a=b=0,3265 nm va c=0,5212 nm bo‘shliqqa tegishli olti burchakli kristall panjaraga ega ekanligi aniqlandi. (002) kristallografik yo‘nalishining intensivligi ZnO va ZnO:Ni 1 at.% plonkalarida eng yuqori ekanligi aniqlandi. Shuningdek, ZnO:Ni 3 va 5 at.% yupqa qatlamlarining ustun yo‘nalishi (101) tekisligiga o‘zgarishi va Ni yoki NiOlarining boshqa ikkilamchi fazalari skanerlash oralig‘ida ko‘rinmasligi, ZnO:Ni tuzilmasidagi Zn^{2+} atomlari Ni^{2+} atomlari bilan almashinishi mumkinligini ko‘rsatdi.

Metall oksidi qatlamlari, asosan, o‘tkazuvchanlikning n-tipli ekanligi aniqlandi. Ni konsentratsiyasi ortishi bilan plonkalarning shaffofligi kamaya borishi bir necha omillarga bog‘liq: nikel ZnO ga nuqtaviy nuqson sifatida kirib, bu nuqsonlar yorug‘likning tarqalish markazlarida bo‘lib, shaffoflikning pasayishiga olib kelishi; dislokatsiya zichligini oshirishi, nikel nuqsonlari qo‘shimcha energiya sathlarini hosil bo‘lganligi bilan izohlanadi.

Foydalanilgan adabiyotlar ro‘yxati:

[1]. Рембеза С.Е., Йулчиев Ш.Х., Расулова М.Б. Структура, свойства и применения металлооксидных пленок ZnO (обзор). Научный вестник АндГУ. Vol. Iss. 2, 2022, p. 5–11.

[2]. Ryu Y. et al., Synthesis of p-type ZnO films. Journal of Crystal Growth, 216(1), 330-334 (200). doi.org/10.1016/S0022-0248(00)00437-1

[3]. Aboud A.A., Shaban M., Revaprasadu N. Effect of Cu, Ni and Pb doping on the photo-electrochemical activity of ZnO thin films. RSC Adv. 2019; 9:7729–7736. DOI:10.1039/C8RA10599E

[4]. Zaouche C., Dahbi L. at.al. Study the effect of Ni doping on structural, optical and electrical properties of $Zn_{1-x}Ni_xO$ thin films deposited by spray pyrolysis technique. Journal of Ovonic Research. Vol.19, №.2. March-April 2023, pp. 197–205