

InSb-MnSb və GaSb-FeGa_{1,3} EVTEKTİK KOMPOZİTİN ELEKTRİK KEÇİRİCİLİYİNDƏ FAZALAR ARASI ZONALARIN TƏSİRİ

M. I. ƏLİYEV, D. H. ARASLI, R. N. RƏHİMOV, A.Ə. XƏLİLOVA

*Azərbaycan MEA, Fizika İnstitutu
Az-1143, H.Cavid pr.33, Bakı, Azərbaycan*

M. TANOĞLU

*İzmir Texnologiya İnstitutu,
Mexanika mühəndisliyi kafedrası
Gülbahçe köyü, 35437,
Urla, İzmir, Türkiyə*

L. ÖZYÜZER

*İzmir Texnologiya İnstitutu,
Fizika kafedrası
Gülbahçe köyü, 35437,
Urla, İzmir, Türkiyə*

InSb-MnSb və GaSb-FeGa_{1,3} evtektik kompozitlərin elektron mikroskopunda mikrostrukturuna baxılmış və fazalararası qeyri-bircins bölgələrin yarandığı müəyyən edilmişdir. Elektrik keçiriciliyinin effektiv qiymətini təyin edərkən fazalar-arası sərhəd bölgəsində yaranan qeyri-bircins zonanın rolu nəzərə alınmışdır.

Исследованием микроструктуры эвтектических композитов InSb-MnSb и GaSb-FeGa_{1,3} на электронном микроскопе установлено, что между полупроводниковой матрицей и металлическими включениями образуются межфазные зоны. При вычислении эффективного значения электропроводности учтена роль этих межфазных зон.

By investigating of microstructure of InSb-MnSb and GaSb-FeGa_{1,3} eutectic composites by electron microscope it has been established that the interfacial zone between semiconductor matrix and metallic inclusions is generated. In computations of effective electric conductivity of composites it was taken into account the role of interfacial zone.

1. GİRİŞ

InSb, GaSb və 3d - keçid elementləri əsasında istiqamətlənmiş kristallaşma üsulu ilə alınan evtektik kompozitlərdə metal iynələrin istiqamətindən asılı olaraq kinetik əmsallarda anizotropluğu müşahidə olunması bu maddələrin əsas xüsusiyyətlərindən biridir [1, 2, 3]. İlk işlərdə elektrik keçiriciliyində müşahidə olunan anizotropluq metal iynələrin qısa qapamaq xüsusiyyəti ilə [1,3], istilik keçiriciliyində müşahidə olunan anizotropluq isə fononların metal-yarımqeçirici sərhədindən səpilməsi ilə [1, 2] izah edilmişdir. Qeyd etmək lazımdır ki, bu maddələrin öyrənilməsi uzun illər davam etsə də, fazalar arası sərhədlə bağlı bir çox məsələlərə tam aydınlıq gətirilməmişdir. Son zamanlar bu maddələrin elektron mikroskopunda tədqiqi ilə onların mikrostrukturunda bir sıra xüsusiyyətlər müəyyən olunmuş və bu xüsusiyyətlər əsasında güman edilən fərziyyələr inkişaf etdirilmişdir. [4] işində fononların təkcə metal-yarımqeçirici sərhədindən deyil, həmçinin sərhəd bölgəsində yaranan qeyri-bircins zonadan da səpilməsi nəzərə alındıqda, nəzəri hesablamalarla eksperiment arasında daha yaxşı uyğunluq alındığı göstərilmişdir.

Belə olan təzədə, sərhəd bölgəsində yaranan qeyri-bircins zona elektrik keçiriciliyində də əhəmiyyətli rol oynamalıdır.

Qeyri bircins sistemlərdə, xüsusən kompozit materiallarda, keçiriciliyin effektiv qiymətinin təyini məsələsi uzun illər müzakirə obyektidir. Effektiv keçiriciliyi

hesablamaq üçün yaradılan nəzəriyyələr 1905-ci ildə Maksvell-Garnett [5] tərəfindən başlanmış və bir çox müəlliflər tərəfindən inkişaf etdirilmişdir. Lakin bu günədək bu məsələni həll edən yetkin nəzəriyyə yaradılmamışdır. Mühitin qeyri-bircinslik dərəcəsi az olduqda sistemə Herrinqin “həyəcanlanma” (perturbation) nəzəriyyəsi [6], mühitin qeyri-bircinsliliyi yüksək olduqda “süzülmə” (perkolation) nəzəriyyəsi [7-10], aralıq hallarda isə “effektiv mühit nəzəriyyəsi” [11 -13] tətbiq edilməklə effektiv keçiricilik təyin olunur. Qeyd etmək lazımdır ki, izotop xassəli kompozit maddələrin effektiv keçiriciliyinin hesablanmasına aid küllü miqdarda tədqiqat işləri olsa da, anizotrop xassəyə malik sistemlərin effektiv keçiriciliyinə həsr olunmuş işlərin sayı çox deyildir. [7, 12, 13].

Çoxfazlı sistemlərin analizi daha çox “süzülmə” (perkolation - bu metod bəzən mexaniki tunel effekti də adlandırılır) nəzəriyyəsi əsasında aparılır. “Süzülmə” sərhədindən (threshold) fərqli tərkiblərdə kompozit maddələrin eksperimental nəticələrini izah etmək üçün elmi ədəbiyyatda daha çox “effektiv mühit nəzəriyyəsi” yaxınlaşmasından istifadə olunur. Bu nəzəriyyələr, ikinci fazası əsasən kürəvi və ellipsoid şəklində olan qeyri homogen mühit üçün inkişaf etdirilmişdir [12, 13]. Son zamanlar “effektiv mühit nəzəriyyəsi” inkişaf etdirilərək yeni “diferensial effektiv mühit nəzəriyyəsi” yaradılmışdır [15, 16]. Bu işlərdə effektiv keçiricilikdə fazalar arası zonanın

InSb-MnSb və GaSb-FeGa_{1,3} EVTEKTİK KOMPOZİTİN ELEKTRİK KEÇİRİCİLİYİNDƏ.....

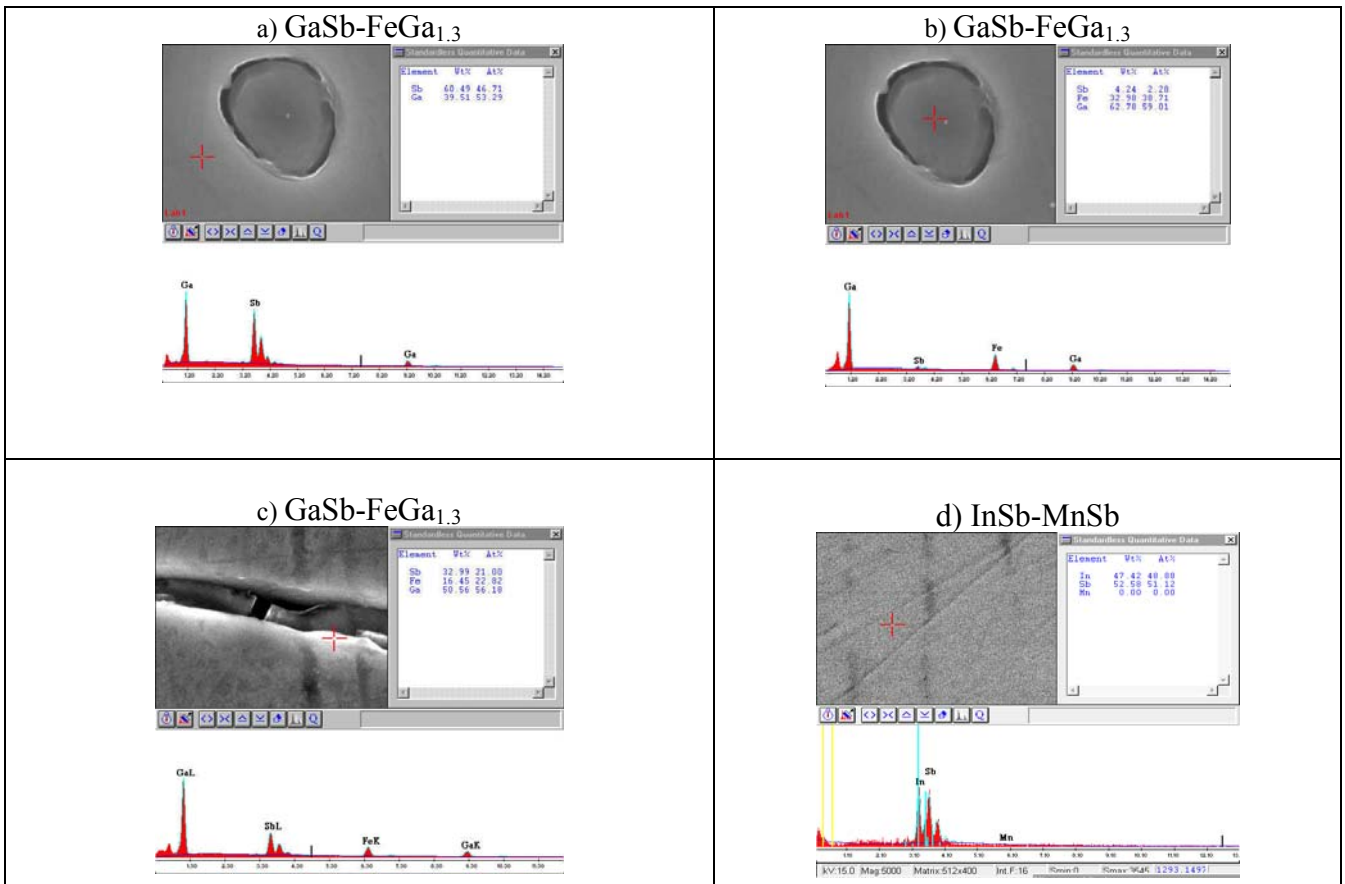
mühüm rol oynadığı göstərilir. Bəzi hallarda belə sistemə iki fazlı deyil, üç fazlı sistem kimi baxılır və effektiv keçiriciliyi hesablayarkən ikinci fazanın həcmi ilə yanaşı üçüncü fazanın - sərhəd bölgəsində yaranan qeyri-bircins zonanın həcmi də nəzərə alınır [16, 17].

Təqdim olunan bu işdə maddələrin mikrostrukturuna baxılmış və elektrik keçiriciliyinin effektiv qiymətini təyin edərək fazalar-arası sərhəd bölgəsində yaranan qeyri-bircins zonanın rolu nəzərə alınmışdır.

2. TƏDQIQATLARIN APARILMASI VƏ ALINAN NƏTİCƏLƏR

Metal fazası iynələr şəklində paralel olaraq kristallaşma oxu boyunca düzülüb InSb-MnSb və GaSb-FeGa_{1,3} evtektik kompozitlərin Bricein üsulu ilə alınması [1-3] işlərdə təsvir olunmuşdur. Maddələrin mikrostrukturunu "Philips™" markalı elektron mikroskopunda (SEM) və EDAX™ rentgen spektroqrafında tədqiq edilmişdir [2, 18]. Nümunələrin elektrik keçiriciliyi dörd zondlu kompensasiya üsulu ilə ölçülmüşdür.

1-ci şəkildə GaSb-FeGa (a, b, c - kristallaşma oxuna perpendikulyar və paralel istiqamətdə) və InSb-MnSb (d - kristallaşma oxuna paralel istiqamətdə) üçün SEM mikroskopundan alınmış görünüş təsvir edilmişdir. Şəkildə eyni zamanda matrisada, iynələrdə və fazalar arası bölgədə maddələrin miqdarı haqqında EDAX spektroqrafından alınan bilgiler verilmişdir. Şəkildən görüldüyü kimi metal faza matrisada bir-birinə paralel iynələr şəklində düzülüb və onların ətrafında qeyri bərabər şəkildə örtük yaranmışdır. Bu örtük fazalar arası zona (FAZ) adlandırılır [17]. EDX analizi ilə matrisanın Ga və Sb atomlarından, metal iynələrin Fe, Ga atomları ilə yanaşı Sb (5-6 çəki%) atomlarından təşkil olunduğu, fazalar arası zonaların isə Sb (32 çəki %), Fe (16 çəki %) və Ga (50 çəki %) atomlarından ibarət olduğu müəyyənləşdirilmişdir. Fazalar arası zonalar (bu bölgələri üçüncü faza da adlandırmaq olar) kələ-kötür quruluşa malik olmaqla yanaşı, onların ölçüləri iynələr boyunca bir-neçə dəfə fərqlənir.

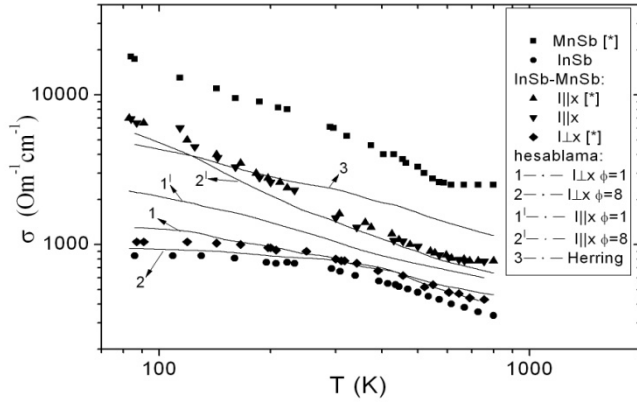


Şək.1 GaSb-FeGa_{1,3} (a, b, c - kristallaşma oxuna perpendikulyar və paralel istiqamətdə) və InSb-MnSb (d - kristallaşma oxuna paralel istiqamətdə) üçün SEM mikroskopundan alınmış görünüşlər.

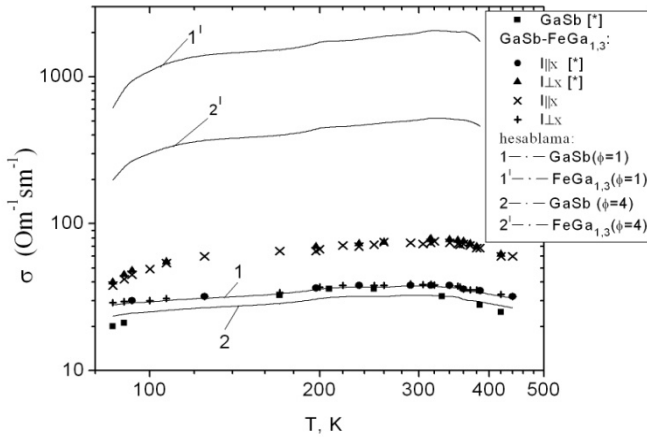
InSb-MnSb üçün elektrik keçiriciliyin temperatur asılılığı, σ_{\perp} , σ_{\parallel} üçün nəzəri ayrılar (2) - (4) formulları ilə $\phi=1$ ($1, 1^1$ ayrıləri) və $\phi=8$ ($2, 2^1$ ayrıləri) qiymətlərində, 3 ayrısı isə (1) formulu ilə hesablanmışdır.

2-ci və 3-cü şəkillərdə cərəyanın (I) və iynələrin (x), müxtəlif qarşılıqlı istiqamətlərində, uyğun olaraq, GaSb-FeGa_{1,3}, InSb-MnSb üçün elektrik keçiriciliyin temperatur

asılılığı verilmişdir. $\perp x$ olduqda evtektik ərintilər üçün $\sigma(T)$ asılılığı, eyni konsentrasiyalı GaSb və InSb üçün $\sigma(T)$ asılılığına uyğun gəlir. Elektrik cərəyanı iynələrin istiqamətində axdıqda ($\parallel x$) elektrik keçiriciliyi $\perp x$ istiqamətindəki qiymətinə nisbətən daha böyük olur. Şəkildə yeni eksperimental bilgilərlə yanaşı [1, 3] işindən götürülmüş bilgiler də verilmişdir.



Şəkil 2. GaSb-FeGa_{1,3} üçün elektrik keçiriciliyin temperatur asılılığı. GaSb və FeGa_{1,3} üçün elektrik keçiriciliyi (2) - (4) formulları ilə uyğun olaraq φ=1 (1, 1¹ ayrılırları) və φ=4 (2, 2¹ ayrılırları) qiymətlərində hesablanmışdır.



Şəkil 3. GaSb-FeGa_{1,3} üçün elektrik keçiriciliyin temperatur asılılığı. GaSb və FeGa_{1,3} üçün elektrik keçiriciliyi (2) - (4) formulları ilə uyğun olaraq φ=1 (1, 1¹ ayrılırları) və φ=4 (2, 2¹ ayrılırları) qiymətlərində hesablanmışdır.

3. MÜZAKIRƏLƏR

Elektrik keçiriciliyində müşahidə olunan anizotropluq ilkin işlərdə [1, 3] iynələrin qısa qapamaq rolu ilə izah olunmuş, lakin aparılmış hesablamalar və eksperimental nəticələr arasında tam uyğunluq alınmamışdır.

Qeyd etmək lazımdır ki, bu maddələrdə I||x istiqamətində elektrik keçiriciliyi metal fazanın elektrik keçiriciliyi tərtibində olmadığından (InSb-MnSb üçün σ_{||}=2000 Om⁻¹sm⁻¹ və σ_{MnSb}=6000 Om⁻¹sm⁻¹; σ_{MnSb}/σ_{||}=3), iynələr arasındakı məsafə hər iki istiqamətdə eyni olduğundan və ikinci fazanın miqdarı (7.9 və 6.5%) “süzülmə” (perkalyasiya) üçün ədəbiyyatda göstərilən həddən (threshold) (11-20 %) aşağı olduğuna görə müşahidə olunan anizotropluq “süzülmə” effekti ilə izah oluna bilməz. Məhz ona görə bu kompozitlərin effektiv keçiriciliyi “effektiv mühit nəzəriyyəsi” əsasında araşdırılması daha münasibdir. Effektiv keçiriciliyi hesablamaq üçün ayrı-ayrı müəlliflər bir sıra ifadələr verilmişdir. Sistemin effektiv keçiriciliyi fazaların ölçülərindən, formasından, məkana görə paylanmasından və sıxlığından asılı olduğundan evtektik kompozitlərin effektiv parametrlərini hesablamaq üçün alınmış bu ifadələrə matrisanın, metal fazanın parametrləri və onun həcmi hissəsi

daxil edilir. Hərrinq, ikinci fazası sferik olan hal üçün effektiv keçiriciliyi (σ_{eff}) aşağıdakı kimi ifadə etmişdir [6]:

$$x_1 \left(\frac{\sigma_1 - \sigma_{eff}}{\sigma_1 + 2\sigma_{eff}} \right) + x_2 \left(\frac{\sigma_2 - \sigma_{eff}}{\sigma_2 + 2\sigma_{eff}} \right) = 0 \quad (1)$$

burada σ₁ və σ₂ uyğun olaraq matrisanın və ikinci fazanın ayrılıqda elektrik keçiriciliyi; x₁ və x₂ isə onların həcmi fraksiyasıdır. Bu ifadə ilə aparılmış hesablamaların nəticəsi 2-ci şəkildə 3 əyri ilə verilmişdir. Lakin bu əyri eksperimental nəticəni izah etmir.

Heterogen sistemin effektiv keçiriciliyini hesablamaq üçün [12] Odelevski I||x olduqda evtektik strukturu iki paralel keçirici kimi, I⊥x olduqda isə ardıcıl və paralel birləşmiş keçiricilərin kombinasiyası kimi təsvir etmiş, kristallaşma istiqamətində (σ_{||}) və ona perpendikulyar istiqamətdə (σ_⊥) elektrik keçiriciliyi üçün aşağıdakı tənlikləri vermişdir:

$$\sigma_{||} = \sigma_1 \frac{1}{1+c} + \sigma_2 \frac{c}{1+c} \quad (2)$$

$$\sigma_{\perp} = \frac{(\sigma_1 - \sigma_2)(1 - \sqrt{c/(1+c)}) + \sigma_1 \sqrt{(1+c)/c}}{1 + (\sigma_2 / \sigma_1)(\sqrt{(1+c)/c} - 1)} \quad (3)$$

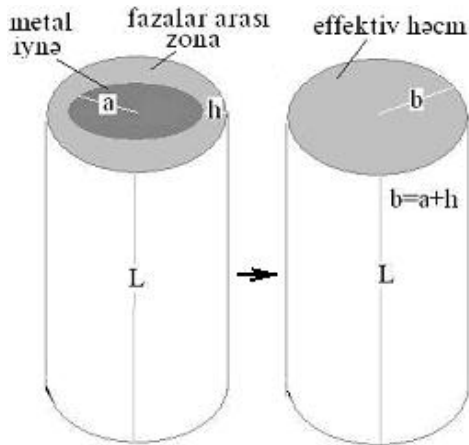
burada σ₁ və σ₂- matrisanın və metal fazanın elektrik keçiriciliyi, c- metal iynələrin ümumi həcmi matrisanın həcminə nisbətidir: c=NV_i/V_m (N – metal iynələrin sıxlığı, V_i - bir metal iynənin həcmi, V_m - matrisanın həcmidir).

Mikrostrukturda müşahidə olunmuş xüsusiyyətləri nəzərə almaq üçün fazalar arası qeyri-bircins bölgənin həcmcə pay nisbəti nəzərə alınmalıdır. Fazalar arası zonanın həcmi V_{FAZ} olarsa, elektrik cərəyanın qısa qapama prosesində iştirak edən metal iynələrin və fazalar arası zonaların birlikdə ümumi həcmi N(V_i+V_{FAZ}) olacaqdır. V_i həcmi mikroskopdan alınan görünüşlərə görə təxmini hesablamaq mümkün olsa da (V_i=πa²L) fazalar arası qeyri-bircins zonanın həcmi hesablamaq mümkün deyildir. Ona görə V_i+V_{FAZ} həcmli zona V_{ef}=πb²L (b=a+h) həcmli effektiv zona ilə əvəz olunmuşdur (4-cü şəkil). Bu isə (2) və (3) ifadələrinə daxil olan c – metal fazanın həcmcə pay nisbətinin c_{ef}=NV_{ef}/V_m ilə əvəz olunmasına ekvivalentdir:

$$c_{ef} = \phi c. \quad (4)$$

burada φ - hesablama zamanı aproksimasiya yolu ilə tapılan ədədi vuruqdur.

InSb-MnSb evtektik kompoziti üçün (2), (3) və (4) ifadələri ilə elektrik keçiriciliyin hesablanmış qiymətləri 2-ci şəkildə bütöv əyrilərlə verilmişdir. φ=1 qiymətində, yəni FAZ nəzərə alınmadığı halda 1 əyrisi matrisanın və kompozitin σ_⊥ qiymətinə uyğun gəlsə də, 1¹ əyrisi kompozitin σ_{||} qiymətləri üçün təcrübədən alınan nəticələrə uyğun gəlmir. Şəkildən görüldüyü kimi φ=8 seçildikdə hesablanmış 2 və 2¹ əyriləri ilə σ_⊥, σ_{||} üçün təcrübədə alınan qiymətlər arasında yaxşı uyğunluq alınır. Bu isə onu göstərir ki, qısa qapama prosesində iştirak edən effektiv zonanın (metal iynələr + FAZ) effektiv radiusu metal iynələrin real radiusundan 2.8 – 3 dəfə çoxdur.



Şək.4 Real iynələr və fazalar arası zonaların birlikdə real həcmnin effektiv həcmə əvəz edilməsinin sxemi.

Ədəbiyyatda ancaq FeGa₃ birləşməsinin termoelektrik xassələri öyrənilmişdir [14]. FeGa_{1,3} üçün elektrik keçiriciliyin ayrıca eksperimental bilgiler olmadığından, GaSb-FeGa_{1,3} evtektik ərintisi üçün hesablamalar aparılması mümkün deyil. Ona görə (2) və (3) tənlikləri birgə həll edilərək, həmçinin, iynələrin və cərəyanın müxtəlif

istiqamətlərində GaSb-FeGa_{1,3} evtektik kompozitin elektrik keçiriciliyinin eksperimental σ_{\parallel} və σ_{\perp} qiymətlərindən, metal fazanın, fazalar arası zonanın və matrisanın həcmcə payları nisbətindən istifadə olunaraq matrisanın və metal fazanın effektiv elektrik keçiriciliyi hesablanmışdır. Hesablanmış nəticələrlə eksperimental bilgiler arasında yaxşı uyğunluq $\phi=4$ qiymətində alınmışdır. Hesablanmış qiymətlərin eksperimentlə uyğunluğu yarımkeçirici-metal sərhədində qeyri bircins zonaların yarandığını bir daha təsdiq edir.

Hesablamalar təsdiq edir ki, anizotropluğa səbəb olan qısa qapama prosesində metal iynələrlə yanaşı fazalar arası zonalar da mühüm rol oynayır. Ayrı-ayrı evtektik kompozitlərdə matrisa və metal fazanın həcmcə payları nisbətinin effektiv qiyməti üçün alınan fərqli qiymətlər, yarımkeçirici-metal sərhəddi yaxınlığında yaranmış qeyri bircins zonaların həcmələrinin və uyğun olaraq, elektrik keçiriciliyindəki qısa qapama rolunun müxtəlifliyi ilə izah oluna bilər.

4. YEKUN

InSb-MnSb və GaSb-FeGa_{1,3} evtektik kompozitin elektrik keçiriciliyində anizotropluğun yaranmasına səbəb olan qısa qapama prosesində metal iynələrlə yanaşı fazalar arası qeyri bircins zonaların da rolunu nəzərə almaq lazımdır.

- [1]. M.I.Aliyev, A.A.Khalilova, D.H.Arasly, R.N.Rahimov, M.Tanoglu, L.Ozyuzer, "Features of Electron and Phonon Processes in GaSb-FeGa_{1,3} // J.Phys.D: Appl. Phys. 2003, v.36, p.2627- 2633.
- [2]. M.I.Aliyev, P.M.Dzhabbarov, D.G.Arasly, M.A.Aliyeva Теплопроводность эвтектического сплава InSb - MnSb. // ФТП, 1973, 2, с.427.
- [3]. M.I.Aliyev, R.M.Cabbarov, M.A. Aliyeva Transport phenomena in InSb-MnSb eutectic composite // Neorganmat, 1975, 2, 1135
- [4]. M.I.Aliyev, D.H.Arasly, R.N.Rahimov, A.A.Khalilova, I.Kh Mammadov, R.M.Jabbarov Thermal properties of eutectic compositions based on InSb and GaSb. // Xəbərlər 2007, 2,
- [5]. J.R.Kalnin, E.Kotomin Modified Maxwell-Garnett equation for the effective transport coefficients in inhomogenous media. // J.Phys.A: Math. Gem. 1998, 31, 7227-7234.
- [6]. C.Herring Effect of random in homogenates of electrical and galvanomagnetic measurements. // J.Appl.Phys., 1960, v.31, no11, p.1939-1953.
- [7]. Б.И.Шкловский, А.Л.Эфрос Теория протекания и проводимость сильно неоднородных сред. // Успехи Физических Наук, 1975, т.117, №3, с.401-435.
- [8]. M.E.Rodriguez., J.J.Perez-Bueno, O.Zelaya-Angel., Gonzalez-Hernandez. Thermal and electrical characterization of (CdTe)_{1-x}Te_x composites: electron-phonon system. // J. Materials Letters, 1998, v.36, p.95-101.
- [9]. B.Sareni, I Krahenbuhi., A.Beroual. Effective dielectric constant of random composite materials. // J.Appl.Phys. 1997, v.81, p.2375-2383.
- [10]. V.K.S Shante., S. Kirpatrick // Adv.Phys. 1971, 20, 325
- [11]. Ю.П. Емец. кн. "Электрические характеристики композиционных материалов с регулярной структурой", Киев, Наукова Думка, 1986.
- [12]. В.И. Оделевский Расчет обобщенной проводимости гетерогенных систем. I. Матричные двухфазные системы с невытянутыми включениями. // Журн.Техн.Физики, 1951, 21, №6, p. 667-677.
- [13]. F Carmona., A.El Amarti. Anisotropic conductivity in heterogenous solids with cylindrical conducting inclusions. // Phys.Rev.B, 1987, 35, no7, 3284-3290.
- [14]. Y.Amaga, A. Yamamoto., C.H Lee. Thermoelectric properties of intermetallic compounds: FeGa₃ and RuGa₃. // Materials Research Society, Symp.Proc. 2004, 793, S8.38.1-S8.38.6.
- [15]. L.M Schwarts., E.J.Garboczi, D.P.Bentz, Interfacial transport in porous media: application to dc electrical conductivity of mortars. // J.Appl.Phys., 78, 5898-5908, 1995
- [16]. Xue A. Qingzhong, percolation model of metal-insulator composites. // Physica B, 2003, v.325, p.195-198.
- [17]. E.J.Garboczi, J.G Berryman. New effective medium theory for the diffusivity or conductivity of a multi-scale concrete microstructure model. Concrete Science and Engineering. 2000, V.2, p.88-96.
- [18]. M.I Aliyev, A.A., Khalilova, D.H.Arasly, R.N.Rahimov, M.Tanoglu, L.Ozyuzer, The microstructure and strain characteristics of GaSb-FeGa doped with Co atoms // Fizika 2007, 13, nö1-2, 337-339.
- [19]. В.В., Леонов Е.Н., Чунарев Ю.Е. Спектор Определение электропроводности и термоэдс составляющих двухфазного полупроводника. Кн.: Физико-химические процессы в гетерогенных системах. - Красноярск 1977. 68 с