

## ZnO-POLİMER ƏSASLI KOMPOZİT VARİSTORLARDA NÜMUNƏLƏRİN OPTİMAL FAİZLƏRİNİN TƏYİNİ

Ş.M. ƏHƏDZADƏ, A.M. HƏŞİMOV, T.K. NURUBƏYLİ

*Azərbaycan Milli Elmlər Akademiyasının Fizika İnstitutu*

*AZ-1143, Bakı, H.Cavid prospekti 131*

*e-mail: [ahadzade79@mail.ru](mailto:ahadzade79@mail.ru)*

Məqalədə ZnO-polimer əsaslı kompozitlərin alınması zamanı pres-ovuntunun qarışdırılma prosesi və polimer-keramika ilə bu sərhəddə formalaşan üçüncü faza arasındakı qarşılıqlı təsir təsvir olunmuş, aşqarlı ZnO-Pe kompozit varistorunda volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttiliyinin ( $\beta$ ), açılma gərginliyinin ( $U_{ac}$ ) doldurucunun həcmi faizindən asılılığı göstərilmiş və optimal nümunə faizləri təyin olunmuşdur. Aparılan çoxsaylı təcrübələr nəticəsində müəyyən olmuşdur ki, ən optimal nümunə faizləri 10-60% həcmi faiz arasında götürülmüş nümunələrdir.

**Açar sözlər :** ZnO, kompozit varistorlar, keramika, polimer, aşqar, pres-ovuntu, qeyri-xəttilik, açılma gərginliyi.  
**UOT:** 621.315.61

### GİRİŞ

Məlumdur ki, kompozit materiallar əhəmiyyətli dərəcədə fərqli fiziki və kimyəvi xüsusiyyətləri olan iki və ya daha çox tərkibli materialdan hazırlanmış və birləşdirildikdə əvvəlkindən fərqli xüsusiyyətlərə malik olan bir materialdır. Kompozit materiallar bir neçə komponentdən – adətən, plastik bazadan (matrisadan) və ona əlavə möhkəmlilik, sərtlik, yüngüllük və s. verən gücləndiricidən - doldurucudan ibarət olur. İstiqamətdən, istifadə sahəsindən, tərkibindən asılı olaraq müxtəlif xüsusiyyətlərə malik olan kompozitlər işləyib hazırlamaq mümkündür.

Kompozitlərdə müşahidə edilən effektlərin yaranması əsasən fazalararası sərhəddə potensial çəpərin formalaşması ilə əlaqədardır. Kompozitlərdə müxtəlif xassələrin meydana gəlməsi və fazalararası sərhəddə yaranan potensial çəpərin parametrləri, əsasən ayrı-ayrı fazaların quruluşundan, elektrofiziki parametrlərindən və polimer-doldurucu sərhəddində baş verən proseslərdən asılıdır. Ona görə də, kompozitlərin tərkibini, fazaların xassələrini dəyişməklə onlarda müxtəlif effektlər yaratmaq və bu kompozitlər əsasında texnikanın müxtəlif sahələri üçün daha effektiv qurğular hazırlamaq mümkündür.

Qeyd edək ki, mikroelektronika, elektronika cihazları, onların funksional elementlərinin kommutasiya və ildırım gərginliklərindən qorunması mühüm problemlərdən biridir. Elektronika sənayesində bütün dünyada elektrik şəbəkələrini və elektronika cihazlarını istehsal etmək üçün ifrat elektrik impulslarından qorumaq üçün müxtəlif növ varistorlardan istifadə olunur. Bu məqsədlə digər materiallardan bir sıra üstünlüyünə görə fərqlənən ZnO əsaslı keramik varistorlar daha geniş tətbiq sahəsi tapmışdır. Qeyd etmək lazımdır ki, son zamanlar mühafizə qurğularının və elementlərinin hazırlanmasının perspektivli istiqamətlərindən biri keramik varistorlar əsasında iki və çoxfazlı kompozit materialların yaradılmasıdır. Bu kompozitləri keramik faza və polimerlər əsasında hazırlamaqla, elektroenergetikanın həm yüksək gərginlik texnikasında, həm də aşağı gərginlik qurğularında indiyə qədər mövcud olanlardan

daha ucuz və yüksək keyfiyyətə malik olan kompozit varistorların alınmasına nail olmaq mümkündür.

İşdə qarşıya qoyulan məqsəd ZnO-polimer əsaslı kompozit varistorlarda optimal nümunə faizlərinin təyin edilməsidir. Bu məqsədlə kompozitlərin sintez prosesi, aşqarlı ZnO-Pe kompozit varistorunda volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttiliyinin ( $\beta$ ) və açılma gərginliyinin ( $U_{ac}$ ) doldurucunun həcmi faizindən asılılığı göstərilmişdir. Sintezi olunmuş nümunələr arasından ən optimal nümunə faizləri təyin olunmuşdur.

### TƏCRÜBİ HİSSƏ VƏ NƏTİCƏLƏRİN MÜZAKİRƏSİ

ZnO əsaslı varistorların sintezi keramik üsulla aparılır [5]. Sintezi prosesi bərk hissəciklər arasında diffuziya hesabına gedir və nəticədə bərk faza əmələ gəlir. Hissəciklərin diffuziyasını artırmaq üçün yuxarı temperaturlardan istifadə edilir. Belə ki, keramik sintez bəzən 2300 K temperaturda aparılır.

Hissəciklərin qarşılıqlı diffuziyasını asanlaşdırmaq üçün onları əvvəlcədən mexaniki olaraq mümkün qədər kiçik ölçüdə xırdalayır. Sənayedə istifadə edilən xırdalama üsulları zamanı adətən 10-40  $\mu\text{m}$  ölçüdə hissəciklər alınır. Həmin hissəciklərin bir-birinə toxunmasını yaxşılaşdırmaq üçün əzilmiş kütlə yüksək təzyiqdə preslənir. Buna baxmayaraq, keramik sintez diffuziya xarakterli və diffuziya sürəti kiçik olduqda, zərrəciklərin birinin atomunun o birinin daxilinə tam diffuziya etməsi üçün çox vaxt tələb olunur. Belə ki, əgər zərrəciyin ölçüsü 10nm və ilkin maddənin elementar qəfəs parametri  $10\text{\AA}=10^{-7}\text{sm}=10^{-3}\text{MKM}$  olarsa, onda atomun (ionun) həmin zərrəciyin bir tərəfindən digərinə doğru diffuziyası zamanı 10000 elementar qəfəsi keçməsi lazım gəlir. Atomun belə bir yol qət etməsi üçün bəzən saatlarla (>10 saat) vaxt tələb olunur.

Sənayedə keramik sintezi adətən nisbətən qısa müddətdə (2-10) saat aparılır [5]. Ona görə də, keramik sintez çox zaman hissəciklərin yalnız toxunma sərhədləri ətrafında gedir və diffuziya prosesi zərrəciklərin toxunma sərhəddində başlayır. Bu zaman sərhəddə aralıq faza əmələ gəlir (şəkil 1). Əgər ilkin diffuziya pro-

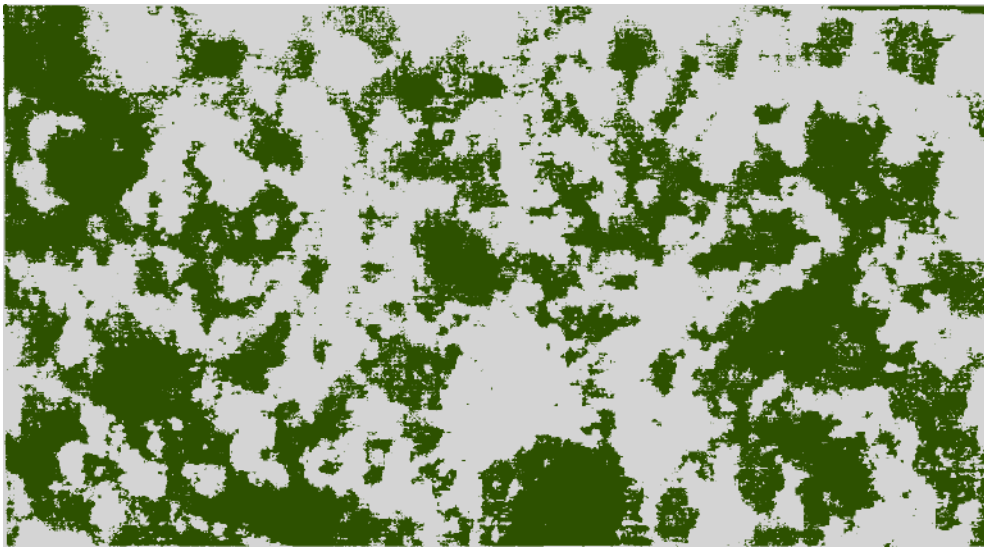
sesinin sürəti, toxunan zərrəciklərin kimyəvi təbiətindən, sintez temperaturundan asılıdırsa, aralıq təbəqə əmələ gəldikdən sonra həmin təbəqənin qalınlığından, atom və ionların diffuziya mütəhərriqliyinə göstərdiyi müqavimətdən də asılı olur. Çox zaman reaksiyanın sürəti aralıq fazanın qalınlığından asılı olaraq eksponensial azalır.

İşdə istifadə olunan kompozit varistorların komponentlərinin əsasını aşqarlı ZnO keramika və qeyri-polyar polietilen (PE) polimeri təşkil edir. Sintez olunan varistorlarda aşqar kimi iştirak edən  $\text{Co}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Sb}_2\text{O}_3$  oksidləri ZnO ilə reaksiyaya girərək spinel tipli  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  ( $a=8.32\text{Å}$ ),  $\text{Zn}_7\text{Sb}_2\text{O}_{12}$  ( $a=8.58\text{Å}$ ),  $\text{Co}_7\text{Sb}_2\text{O}_{12}$  ( $a=8.55\text{Å}$ ),  $\text{MnCr}_2\text{O}_4$  ( $a=8.436\text{Å}$ ),  $\text{CoCr}_2\text{O}_4$  ( $a=8.32\text{Å}$ ) və s. birləşmələr əmələ gətirir.

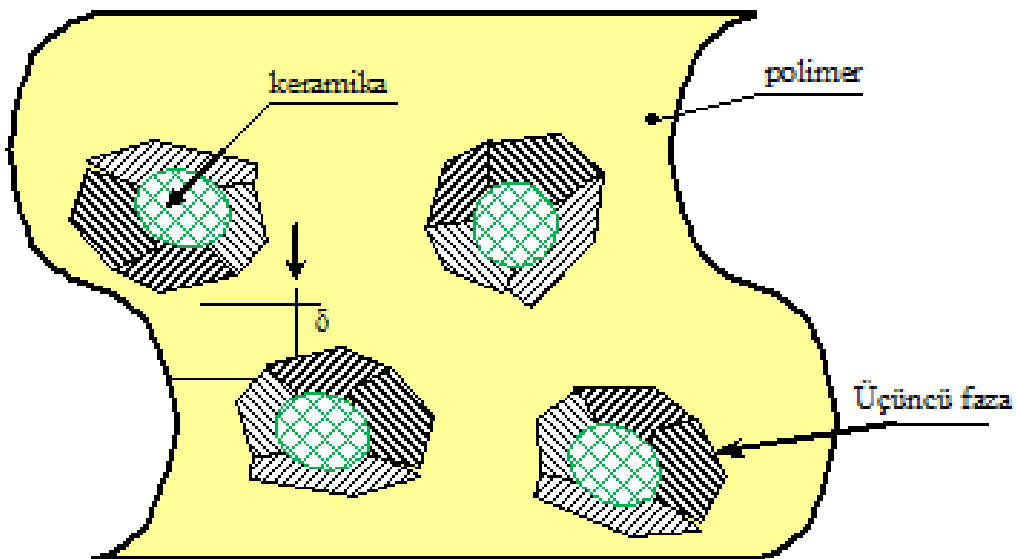
Kompozitin alınma prosesinin ilkin mərhələsi bu iki komponentin, yəni keramika və polimerin pres-

ovuntusunun hazırlanmasıdır [7]. Pres-ovuntunun alınmasının ilkin mərhələsi komponentlərin xırdalanması və qarışdırılmasıdır. Müasir zamanda ilkin məmulatın (polimer və ZnO) qarışdırılması üçün daha sadə və universal keramik qarışdırma metodundan istifadə edilir və nəticədə komponentlərin bircins qarışığı alınır [7]. Qarışdırma prosesi mikrodəyirmanlarda quru halda aparılır. Məsələnin qoyuluşundan asılı olaraq keramik fazanın hissəciklərinin diametri  $60\mu\text{m}$ -dən  $350\mu\text{m}$ -ə qədər dəyişdirilmişdir. Polimer faza kimi yüksək dielektrik xassələrə malik sənaye məqsədi üçün nəzərdə tutulan polimer tozu götürülmüşdür [1-4;10].

Şəkil 1-də pres-ovuntunun qarışdırılma prosesi təsvir olunmuşdur.



Şəkil 1. Pres-ovuntunun qarışdırılma prosesi.



Şəkil 2. Fazalararası qarşılıqlı təsir.

Pres-ovuntunun ayrı-ayrı komponentləri əvvəlcə ovuntu şəklində 413 K-də polimerlər, 523 K-də isə ZnO keramikası qurudulmuşdur. Pres-ovuntunun ayrı-ayrı komponentlərinin strukturu və elektrofiziki parametrləri onun əsasında hazırlanacaq varistora qoyulan tələbatdan asılıdır [9].

Qeyd edək ki, istənilən materialın varistor olması üçün onun fiziki strukturunda elektrofiziki, istilik və fiziki xassələri bir-birindən kəskin fərqlənən oblastların, yəni kristallik və amorf fazaların olması vacibdir. Əgər bu əsas tələb ilə kompozitləri nəzərdən keçirsək görürük ki, polimer-keramika və polimer-yarımkəçirici kompozitləri bu tələbi ödəyir [6]. Yəni, kristallik faza rolunu keramika və ya yarımkəçirici, amorf faza rolunu isə polimer matrisa oynayır. Amma, çox sayda mikroskopik və struktur tədqiqatlar göstərir ki, kompozit materiallarda varistor effektinin formalaşmasına və onun elektrofiziki xassələrinə, molekulyarüstü quruluşuna və fazalararası sərhəddəki elektron proseslərinə kəskin təsir edən üçüncü fazadır. Bu faza polimer-keramika və polimer-yarımkəçirici sərhəddində yaranır.

Şəkil 2-də ZnO-polimer kompozitində polimer-keramika ilə polimer keramika sərhəddində yaranan üçüncü faza arasındakı qarşılıqlı təsir göstərilmişdir.

Şəkil 2-dən görünür ki, 3-cü faza qeyri-orqanik hissəciklərin səthinin təsirindən formalaşır. Fazalararası elektrik potensialı  $\varphi$ -in parametrləri bu fazanın elektrofiziki xassələri ilə təyin olunur. Deməli, polimer-keramika və polimer-yarımkəçirici kompozitlərinin açılma gərginliyi və volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttiliyi əsasən 3-cü fazanın xassələrindən asılıdır.

Qeyd etmək lazımdır ki, qarışıqın bircins alınması xüsusi əhəmiyyət kəsb edir. Çünki, ZnO-polimer kompozitində varistor effektinin formalaşmasında fazalararası qarşılıqlı təsirlərin mühüm əhəmiyyəti vardır. Ona görə də, fazalararası sərhəddə gedən proseslərin nümunənin həcmində bərabər paylanması onun elektrofiziki parametrlərinə nəzərə çarpacaq dərəcədə təsir edir [8].

Məlumdur ki, varistor ikiqütblü qeyri-xətti rezistordur və müqaviməti gərginliklə idarə olunur. Varistorun müqavimətinin gərginlikdən asılı olması onunla nəticələnir ki, onun statik ( $U/I$ ) və dinamik ( $\Delta U/\Delta I$ ) müqavimətləri bir-birindən fərqlənir. Varistorun volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttilik dərəcəsi, qeyri-xəttilik əmsalı ( $\beta$ ) ilə xarakterizə olunur.  $\beta$  dinamik və statik keçiriciklərin nisbətində bərabərdir:

$$\beta = \frac{\sigma_{din}}{\sigma_{st}} = \frac{\Delta I}{\Delta U} \cdot \frac{U}{I} \quad (1)$$

Təcrübi nəticələr əsasında qurulmuş volt-ampere xarakteristikalarından  $\beta$  əmsalı qrafik vasitəsilə təyin olunur [12].

$$\beta = \frac{U_m}{u_m} \quad (2)$$

Əgər volt-ampere xarakteristikası üstlü funksiya ilə ifadə olunursa, onda varistorun qeyri-xəttilik əmsalı ( $\beta$ ) birmənalı olaraq qeyri-xəttilik xassəsini xarakterizə edir, yəni:

$$I = BU^\beta ; U = AI^\alpha \quad (3)$$

Burada  $A, B, \alpha, \beta$  bir-biri ilə aşağıdakı nisbətlərlə əlaqədirlər:

$$\beta = \alpha^{-1}; B = A^{-\beta} \quad (4)$$

Lakin, çox hallarda volt-ampere xarakteristikasının üstlü ifadələrlə approksimasiyası təqribidir və  $\beta$  əmsalı həm gərginlikdən, həm də  $\Delta U$ -nun dəyişmə intervalının enindən asılıdır.

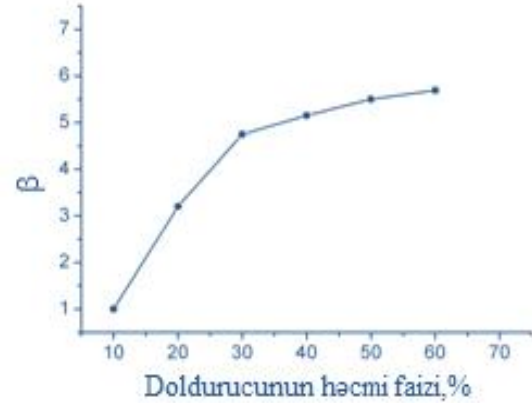
$\beta$ -əmsalının hesabı üçün volt-ampere xarakteristikasının iki nöqtəsindən istifadə etmək kifayətdir:

$$\beta = \frac{\ln\left(\frac{I_2}{I_1}\right)}{\ln\left(\frac{U_2}{U_1}\right)} \quad (5)$$

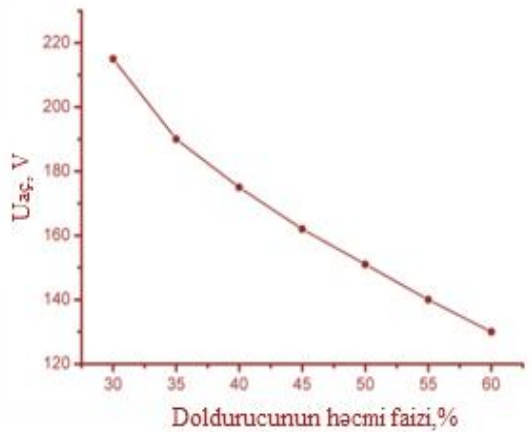
Varistor materiallarının varistor effektini təyin edən əsas parametrlər onların volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttiliyi ( $\beta$ ) və açılma gərginliyi ( $U_{aç}$ ) olduğu üçün, kompozit varistorların analoji parametrləri təyin olunmuşdur.

Alınmış nəticələr əsasında qurulmuş qrafiklər şəkil 3 və şəkil 4-də göstərilmişdir.

Şəkil 3-də aşqarlı ZnO-Pe kompozit varistorunda volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttiliyinin ( $\beta$ ) doldurucunun həcmi faizindən asılılığı göstərilmişdir.



Şəkil 3. Aşqarlı ZnO-Pe kompozit varistorunda volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttiliyinin doldurucunun həcmi faizindən asılılığı.



Şəkil 4. Aşqarlı ZnO-Pe kompozit varistorunda açılma gərginliyinin doldurucunun həcmi faizindən asılılığı.

Şəkil 3-dən aydın görünür ki, kompozitdə doldurucunun həcmi faizi artdıqca kompozit varistorun volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttilik əmsalı ( $\beta$ ) da kifayət qədər artır ( $\beta=1\div 5,5$ ).

Şəkil 4-də aşqarlı ZnO-Pe kompozit varistorunda açılma gərginliyinin doldurucunun həcmi faizindən asılılığı göstərilmişdir.

Şəkil 4-dən görünür ki, kompozitdə doldurucunun həcmi faizi artdıqca kompozit varistorun açılma gərginliyi ( $U_{aç}$ ) azalır.

Qeyri-xəttilik əmsalının kifayət qədər böyük və açılma gərginliyinin geniş intervalda dəyişməsi alınmış kompozit varistorların effektivliyini göstərir [11].

Alınan təcrübə nəticələri göstərir ki, (şəkil 3, 4) bütün digər elektrofiziki və həndəsi ölçü faktorlarının sabitliyi şəraitində kompozitdə ZnO fazasının həcmi faizi artdıqca onun açılma gərginliyi azalır, qeyri-xəttilik əmsalı artır. 60% həcmi faizlərdən artıq hallarda kompozitin fiziki baxımdan bütövlüyü saxlanmadığı üçün, bu faizdən yuxarı həcmi faizlərdə təcrübələr aparılmamışdır. Aparılan çoxsaylı təcrübələr nəticəsində müəy-

yən olmuşdur ki, ən optimal nümunə faizləri 10-60% həcmi faiz arasında götürülmüş nümunələrdir.

## NƏTİCƏ

ZnO-polimer kompozitində varistor effektinin formalaşmasında fazalararası qarşılıqlı təsirlərin mühüm əhəmiyyəti vardır. Fazalararası qarşılıqlı təsirləri öyrənmək üçün kompozit varistorların varistor effektini müəyyən edən əsas parametrlərin, onların volt-ampere xarakteristikasının qeyri-xəttiliyi ( $\beta$ ) və açılma gərginliyinin ( $U_{aç}$ ), həmçinin optimal nümunə faizlərinin təyini vacib məsələlərdən biridir. Bu məqsədlə məqalədə kompozit varistorların analogi parametrləri təyin olunmuşdur.

Qeyd etmək lazımdır ki, polimer dielektriklərin keramik hissəciklərlə dispersiya olunması fazalararası sərhəddə potensial çəpərin yaranmasına səbəb olur ki, bu da kompozitdə varistor effektinin formalaşmasına və onun elektrik sahəsinin təsirindən dəyişməsinə gətirib çıxarır.

- 
- [1] Sh.M. Ahadzadeh A.M. Hashimov. Possibility varistor effect of different properties in polymers, Bilbao, Spain, ICTPE-2016, p.181-18.
- [2] Ş.M. Əhədzadə. ZnO-polietilen əsaslı varistorlarının elektrik və mexaniki xassələrinin təyini. Energetikanın problemləri, № 4, 2019, s. 18-24.
- [3] Под редакцией Б.И. Сажина, Электрические свойства полимеров, Ленинград, Химия, 1986, 223.
- [4] Ş.M. Əhədzadə. ZnO-polimer əsaslı kompozit varistorlarda istifadə olunan polimerlərin elektrik möhkəmliyində rolu. Fizika jurnalı, №2, 2021, səh.8-12.
- [5] Ф.Харирчи, Ш.М.Гасанли, Ш.М.Азизова, Дж.Дж.Халилов. Спектроскопия диэлектрических параметров варисторов на основе ZnO, Электронная обработка материалов, 2012, 48(1) 58–62.
- [6] Ş.M. Əhədzadə. Elektrik qaz boşalma prosesinin ZnO-polimer kompozit varistorunun rentgen spektrlərinə təsiri, Fizika jurnalı, №1, 2016, səh.11-14.
- [7] A.M. Həşimov, K.B. Qurbanov, Ş.M. Həsənlı, R.N. Mehdişadə, Ş.M. Əzizova, X.B. Bayramov. Nazik təbəqəli kompozit varistorun hazırlanma üsulu, Azərbaycan Respublikası Standartlaşdırma, Metrologiya və Patent üzrə dövlət Agentliyi. I 2007 0172.
- [8] A.M. Hashimov, Sh.M. Hasanli, R.N. Mehtizadeh, Kh.B. Bayramov, Sh.M. Azizova. Zinc Oxide and Polymer Based Composite Varistors, Physica status solidi (PSS), Vol. 3(c), 8, 2006, 2871- 2875.
- [9] Ş.M. Əhədzadə. ZnO varistorlarının əsas parametrlərinin təyini və sintez prosesinin optimallaşdırılması. Energetikanın problemləri, № 4, 2021, səh 22-28.
- [10] Ş.M. Əhədzadə. ZnO-polietilen əsaslı varistorlarının elektrik və mexaniki xassələrinin təyini. Energetikanın problemləri, № 4, 2019, səh 18-24.
- [11] M.A. Kurbanov, Sh.M. Ahadzade, I.S. Ramazanova, Z.A. Dadashov, I.A. Farajzade. "Varistor effect in highly heterogeneous polymer-ZnO systems" FTP, 2017, Volume 51, Issue 7, pp. 992-997.
- [12] Sh.M. Ahadzadeh, A.M. Hashimov. Possibility varistor effect of different properties in polymers, Bilbao, Spain, ICTPE-2016, p.181-18.

Sh.M. Ahadzade, A.M. Hashimov, T.K. Nurubeyli

## DETERMINATION OF THE OPTIMAL PERCENTAGE CONTENT OF SAMPLES IN COMPOSITE VARISTORS BASED ON A ZnO- POLYMER

Interfacial interaction plays an important role in the formation of the varistor effect in composites based on ZnO-polymer. One of the most important issues in the study of interfacial interactions is the determination of the main parameters that determine the varistor effect of composite varistors - their nonlinearity of the current-voltage characteristic ( $\beta$ ) and opening voltage ( $U_{op}$ ), as well as optimal sample percentages. For this purpose, similar parameters of composite varistors are defined in the article.

It should be noted that the dispersion of polymer dielectrics by ceramic particles leads to the formation of a potential barrier at the interface, which leads to the formation of a varistor effect in the composite and its change under the action of an electric field.

**Ш.М. Ахадзаде, А.М. Гашимов, Т.К. Нурубейли**

**ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОПТИМАЛЬНОГО ПРОЦЕНТНОГО СОДЕРЖАНИЯ ОБРАЗЦОВ В  
КОМПОЗИЦИОННЫХ ВАРИСТОРАХ НА ОСНОВЕ ZnO-ПОЛИМЕРА**

Формирование варисторного эффекта в композитах на основе ZnO-полимер играют важную роль межфазное взаимодействие. Одним из важнейших вопросов исследования межфазных взаимодействий является определение основных параметров, определяющих варисторный эффект композитных варисторов - их нелинейность вольт-амперной характеристики ( $\beta$ ) и напряжения открывания ( $U_{om}$ ), как а также оптимальные проценты образцов. Для этого в статье определены аналогичные параметры композитных варисторов.

Следует отметить, что диспергирование полимерных диэлектриков керамическими частицами приводит к образованию потенциального барьера на межфазной границе, что приводит к формированию в композите варисторного эффекта и его изменению под действием электрического поля.