

TlInSe₂-TlYbSe₂ SISTEMİNDƏ İSTİLİKKEÇİRMƏNİN XÜSUSİYYƏTLƏRİ

A.M. ƏHMƏDOVA, K.S. İMANOVA

1. Azərbaycan Dövlət İqtisad Universiteti, Bakı şəh. İstiqlaliyyət Küçəsi 6
2. Sumqayıt Dövlət Texniki Kolleci, Sumqayıt şəh. Heydər Əliyev prospekti 37
arzu.70@bk.ru

Bu işdə TlInSe₂-TlYbSe₂ sisteminin bərk məhlullarının istilikkeçirmə hadisəsi tədqiq edilmişdir. Onlarda fononların səpilmə mexanizmləri müəyyən edilmişdir. Baxılan sistemdə ərimə oblastında "Tərkib- istilik xassələri"nin diaqramı qurulmuşdur.

Müəyyən edilmişdir ki, TlIn_{1-x}Yb_xSe₂ bərk məhlullarında itterbiumun nisbi miqdarının artması ilə tərkibdə qəfəs istilikkeçirmə əmsalı və anizotropuq azalır.

Aşkar edilmişdir ki, bu bərk məhlullarda Debay temperaturundan yüksək temperaturalarda fononların səpilməsində üçfononlu proseslərlə yanaşı normal proseslər və nöqtəvi defektlərdən səpilmələr üstün rol oynayır.

Açar sözlər: istilikkeçirmə, bərk məhlul, fonon

PACS: 72.15.Cz, 64.75.Nx

Son illər öz maraqlı xüsusiyyətlərinə görə tərkiblərinə nadir torpaq elementləri – lantanoidlər daxil olan mü-rəkkəb birləşmə və bərk məhlullar tədqiqatçıların diqqətini çəkməkdədir. Bu materiallar, adətən, yüksək möhkəmlik, xarakteristik yarımkeçirici parametrlərinin stabilliyi və onların tərkibi dəyişməklə idarə oluna bilməsi və s. kimi xüsusiyyətlərə malik olmaları ilə fərqlənirlər. Belə obyektlərdən biri də TlInSe₂-TlYbSe₂ sistemində məhdud həllolma oblastında mövcud olan TlIn_{1-x}Yb_xSe₂ tərkibli bərk məhlullardır. [1-2], [5]-də göstərilirdi ki TlInSe₂ üçqat birləşməsində tallium atomları +1, indium atomları isə +3 valentlilik göstərilir. Üçvalentli indium atomlarının ion radiusları üçvalentli itterbium ionlarının radiuslarına yaxındır. Bu baxımdan TlInSe₂ birləşməsində üçvalentli indium ionlarının tədricən üçvalentli itterbium ionları ilə əvəz edilə bilməsi real bir məsələ kimi qarşıya çıxır və nəticədə $Tl^{+1}In^{+3}Se_2^{+2} \rightarrow Tl^{+1}In_{1-x}^{+3}Yb_x^{+3}Se_2^{-2}$ belə sxem üzrə TlInSe₂-TlYbSe₂ sistemində TlInSe₂ birləşməsi əsasında bərk məhlullar meydana gəlir. [2] işində aparılan tədqiqatlar göstərir ki, baxılan sistemdə həll olma oblastı mövcuddur və otaq temperaturunda $\theta=12 \text{ mol\%}$ TlYbSe₂ intervalını əhatə edir. Bütün TlIn_{1-x}Yb_xSe₂ tərkibli bərk məhlullar ilkin TlInSe₂ birləşmələri kimi tetraqonal sinqoniyada kristallaşır və tərkiblərdə itterbiumun nisbi miqdarı artdıqca onların ərimə temperaturu da yüksəlir.

"Tərkib-elektrik xassələri"nin tədqiqi göstərir ki, bütün bərk məhlullar p-tip keçiriciliyə malik yarımkeçiricidirlər, onlar yaddaşlı çeviricilik xassəsinə malikdirlər.

"Tərkib-istilik xassələri" diaqramının tədqiqi bu materiallarda ilkin komponentlərdə müşahidə oluna bilməyən əlavə istilikkeçirmə və səpilmə mexanizmlərinin və digər xüsusiyyətlərin aşkarına imkan verir. Bu baxımdan TlInSe₂-TlYbSe₂ sistemində müşahidə olunan bərk məhlullarda istilikkeçirmə hadisələrinin tədqiqi böyük maraq kəsb edir.

TƏCRÜBİ HİSSƏ

Tədqiqat üçün monokristallik nümunələr Bricmen üsulu ilə alınmışdır və onların hamısı p-tip keçiriciliyə malikdirlər.

Nümunələrdə istilikkeçirmə stasionar üsulla [001] və

[100] oxları istiqamətdə olmaqla laylara perpendikulyar və paralel yönəlmiş istilik selləri üçün ölçülmüşdür. Nümunələr $4x5x10 \text{ mm}^2$ ölçülü paralelopiped şəklində hazırlanmışdır. Nümunə ilə qızdırıcı və soyuducu arasında istilik kontaktı gümüş pastası ilə həyata keçirilmişdir. İstilikkeçirmə əmsalının ölçülmə dəqiqliyi +6% olmuşdur.

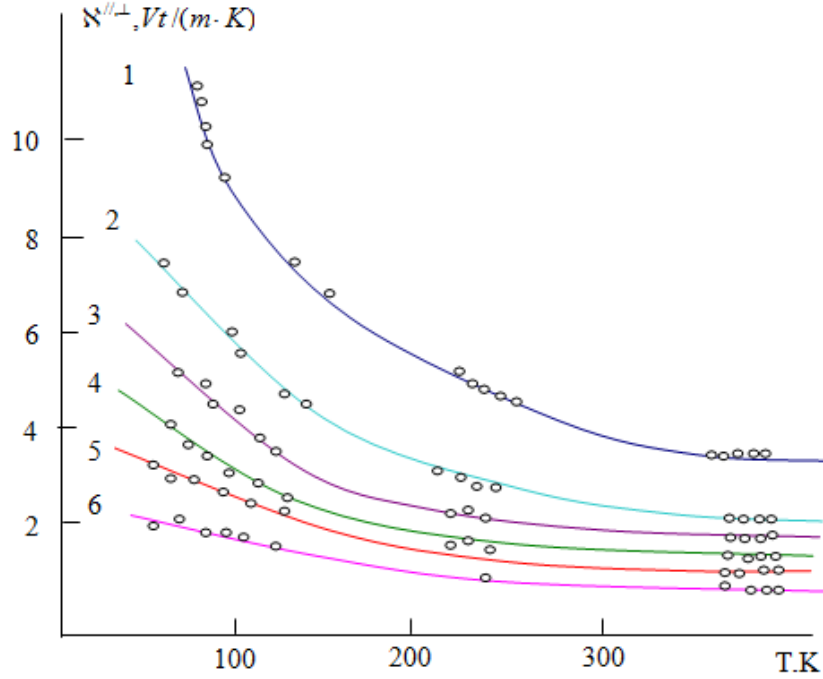
NƏTİCƏLƏR VƏ ONLARIN MÜZAKİRƏSİ

Tədqiq olunan nümunələr üçün ümumi istilikkeçirmə əmsalının (χ) temperatur asılılığı şəkil 1-də göstərilmişdir. Videman-Frans qanununa əsasən istilikkeçirmənin elektron toplanmasının qiyməti $10^{-2}-10^{-3}Vt/(m \cdot K)$ tərtibində alınmışdır və bu kəmiyyət ümumi istilikkeçirmə əmsalının 1%-i tərtibində olduğundan, onu nəzərə almadan istilikdaşınmada əsas rolu qəfəs istilikkeçirməsinin oynadığını qəbul edirik.

Qrafiklərdən görüldüyü kimi, bütün tərkiblərdə istilikkeçirmədə güclü anizotropuq müşahidə olunur.

Məsələn, ilkin komponent TlInSe₂ birləşməsində 100 K temperaturda laylara paralel istiqamətdə yönəlmiş temperatur qradienti halında qəfəs istilikkeçirmə əmsalı $\chi_{100K}^{\parallel} = 6,8Vt/(m \cdot K)$, laylara perpendikulyar istiqamətdə isə $\chi_{100K}^{\perp} = 3,85Vt/(m \cdot K)$ olmuşdur. Həmin kəmiyyətlər 200K və 300K temperaturalarda, uyğun olaraq, $\chi_{200K}^{\parallel} = 3,05Vt/(m \cdot K)$, $\chi_{200K}^{\perp} = 2,1Vt/(m \cdot K)$, $\chi_{300K}^{\parallel} = 1,85Vt/(m \cdot K)$ və $\chi_{300K}^{\perp} = 1,42Vt/(m \cdot K)$ olmuşdurlar.

Atomları kristal qəfəsdə nizamlı düzülmüş ilkin komponentlərdən onlar əsasında formalaşan bərk məhlullara keçdikcə tərkibin atom çəkisinin artması ilə istilikkeçirmə dəyişməsində müəyyən kənaraçıxma əmsalı müşahidə olunur (şəkil 1). Bu onunla əlaqədardır ki, TlInSe₂ birləşməsi əsasında üçvalentli indium atomlarını üçvalentli itterbium atomları ilə əvəz etdikdə, lokal nöqtəvi defektlərin meydana çıxması defektli sıxlığın və elastiki xassələrin lokal dəyişməsinə səbəb olur. Bu isə, öz növbəsində, baxdığımız növ dəyişən tərkibli bərk məhlullarda ilkin komponentlərdən fərqli olaraq, əlavə səpilmə mexanizmlərinin meydana çıxmasına gətirir.



Şəkil 1. TlIn_{1-x}Yb_xSe₂ bərk məhlullarında qəfəs istilikkeçirmə əmsallarının laylara paralel- χ'' və laylara perpendikulyar χ^\perp istiqamətlərdə temperatur asılılıqları.

TlIn_{1-x}Yb_xSe₂ tərkibli bərk məhlullarda fononların əsas səpilmə mexanizmlərini müəyyən etmək məqsədi ilə istilikkeçirmə əmsalının təcrübi qiymətləri, otaq temperaturunda Klemens [4] tərəfindən üçfononlu keçid prosesləri (*U*-proseslər) və nöqtəvi defektlərdən səpilmələri nəzərə almaqla hesablanmış qiymətlərlə müqayisə olundu. [3,4] işlərinə əsasən tam relaksasiya müddəti üçün $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_N} + \frac{1}{\tau_U}$ münasibəti ödənilir. Burada $\frac{1}{\tau_N} = A\omega^4$ və $\frac{1}{\tau_U} = B\omega^4$ olub, τ - defektlərdən səpilməklə τ_U - isə *U*- proseslərində relaksasiya müddətləridir. Əgər tam relaksasiya müddətlərinin bu ifadəsini fononların istilik daşınma halı üçün ümumiləşmiş istilikkeçirmə tənliyində nəzərə alsaq, qəfəs istilikkeçirmə əmsalı üçün

$$\chi_q = \frac{3}{(2\pi)^3} \int v_{qr}^2 \cos \theta \tau(\vec{q}) d^3q$$

alırıq. Burada C_f - fonon istilik tutumu, $\tau(q)$ - fononlar üçün ümumi relaksasiya müddətidir. (3- faktoru rəqs spektrinin üç budağına müvafiq olaraq daxil edilir).

İntegrallamadan sonra nöqtəvi defektlər halında istilikkeçirmə əmsalı üçün

$$\chi_{asq} = \frac{k_0}{2\pi^2 \bar{v}_0} \cdot \frac{\omega_0}{B} \arctg \left(\frac{\omega_{max}}{\omega_0} \right)$$

alırıq. Burada $\omega_0^2 = \frac{B}{A}$ -tezlik ölçü vahidinə malikdir, ω_{max} - Debay modelinə uyğun maksimal tezlik, v_0 -orta səs sürətidir. Detektor olmayan hal üçün kristalın istilikkeçirmə əmsalının ifadəsi $A=0$ şərtindən

$$\omega_0 = \frac{k_0 \omega_{max}}{2\pi^2 \bar{v}_0 B} \Rightarrow \frac{B}{\omega_{max}} \arctg \left(\frac{\omega_{max}}{\omega_0} \right)$$

alırıq. (4) və (3)-ün kombinasiyasından

$$\chi_{asq} = \chi_0 \frac{\omega_0}{\omega_{max}} \arctg \left(\frac{\omega_{max}}{\omega_0} \right)$$

alınır. Buradan görünür ki, χ_{asq} -ni hesablamaq üçün ω_0/ω_{max} - nisbətini bilmək lazımdır. (4) ifadəsindən istifadə edərək, aşağıdakı çevrilmələrdən

$$\frac{\omega_0^2}{\omega_{max}^2} = \frac{B}{A\omega_{max}^2} = \frac{k_0}{2\pi^2 \bar{v}_0 \chi_0 \omega_{max} A}$$

alırıq. Əgər χ_0 məlum olarsa, $\frac{\omega_0}{\omega_{max}}$ nisbətini A - ni bil-

məklə hesablamaq olar. Eyni zamanda kristalda elastiki xassələrin və sıxlığın lokal dəyişmələri baş verərsə, A kəmiyyətini hesablamaq mürəkkəbdir. Amma, əgər kristalda elastiki xassələrin dəyişməsi(nin) cüzi xarakter daşmasını nəzərə almamaq mümkün olursa, onda fononlar əsasən sıxlığın lokal dəyişmələri hesabına defektlərdən

səpilməyə məruz qalırlar və bu halda A kəmiyyətini hesablamaq sadələşir. Bizim tədqiqat obyektlərimiz olan $TlIn_{1-x}Yb_xSe_2$ tərkibli bərk məhlullarda əvəz olunan indium və onları əvəz edən itterbium atomları üçvalentli olduqlarından, belə əvəzləmədə elastiki xassələrin dəyişməsinə nəzərə almasaq, baxdığımız bərk məhlullarda defektlər üçvalentli indium və itterbiumun ion radiusları arasındakı fərq hesabına kristalda sıxlığın lokal dəyişmələri nəticəsində yaranır. Belə hal üçün

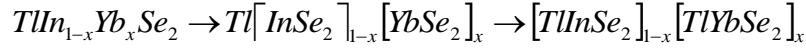
$$A = \frac{\sum x_i (M_i - \bar{M})^2}{4\pi\bar{V}_0^3 N \bar{M}^2} = \frac{I}{4\pi\bar{V}_0^3 N} \Gamma \text{ kimidir və } \Gamma \text{ - ni}$$

zamsızlıq əmsalındır. $\Gamma = \frac{x(I-x)}{(\Delta M / \bar{M})^2}$ kimi sadə düsturla

hesablanır. Γ kəmiyyəti qiymətləndirilərkən uyğun tərkibdə vahid həcmdəki atomlar sayı rentgenoqrafik üsulla

$$N = \frac{d_{rent}}{M} = \frac{aZ}{\Omega_0} \text{ kimi təyin olunur. Tetraqonal sinqoniya}$$

üçün $\Omega_0 = a^2 C$ tədqiq olunan bərk məhlulları



kimi də təsvir etmək olar, onda

$$\frac{\Delta M}{\bar{M}} = \frac{\bar{M}_{TlYbSe_2} - \bar{M}_{TlInSe_2}}{(1-x)\bar{M}_{TlInSe_2} - x\bar{M}_{TlYbSe_2}}; M = \sum_i x_i M_i$$

yaza bilərik. Burada $\bar{M}_{TlInSe_2} = 143,6$ və $\bar{M}_{TlYbSe_2} = 158,16$

Hər bir aralıq tərkib üçün, ilkin komponent $TlInSe_2$ -də olduğu kimi eninə və uzununa ultrasəs dalğalarının tetraqonal oxlar boyu yayılma halları üçün orta qiyməti müəyyən edilmişdir. Debay temperaturu Lindeman qaydası ilə təyin olunur: $\theta_D = C_L T_{er}^{\frac{1}{2}} A^{\frac{5}{6}} \rho^{\frac{1}{3}}$. Burada T_{er} -

kristalin ərimə temperaturu, ρ - q/sm^3 -lərlə onun sıxlığı, C isə baxılan kristallik quruluş üçün sabitdir.

Tədqiq olunan $TlIn_{1-x}Yb_xSe_2$ bərk məhlulları $TlInSe_2$ üçqat birləşməsi əsasında alındığından, bu məhlullar üçün

$\frac{\omega}{\omega_D}$ nisbətini hesablayarkən, defektlər olmayan haldakı ω_D

qəfəs istilikkeçirmə əmsalı üçün $TlInSe_2$ birləşməsinin uyğun kristalloqrafik oxlar (a və c) istiqamətindəki qəfəs istilikkeçirmə əmsallarının qiymətləri götürülür.

İlkin $TlInSe_2$ birləşməsinə müvafiq $x=0$ üçün nöqtəvi defektlərdən əlavə səpilmələr baş vermir. ($A=0$) (4)

və tezliklər nisbəti sonsuzluğa çevrilir. $\frac{\omega_0}{\omega_D} = \infty$. Tədqiq

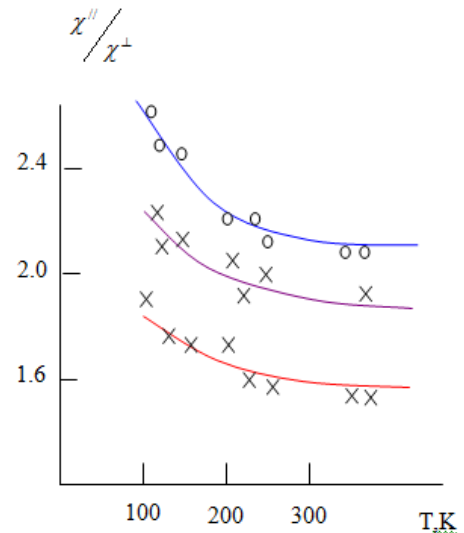
olunan aralıq tərkiblər üçün $\frac{\omega}{\omega_D} < 1$ olduğundan (5)

tənliyi

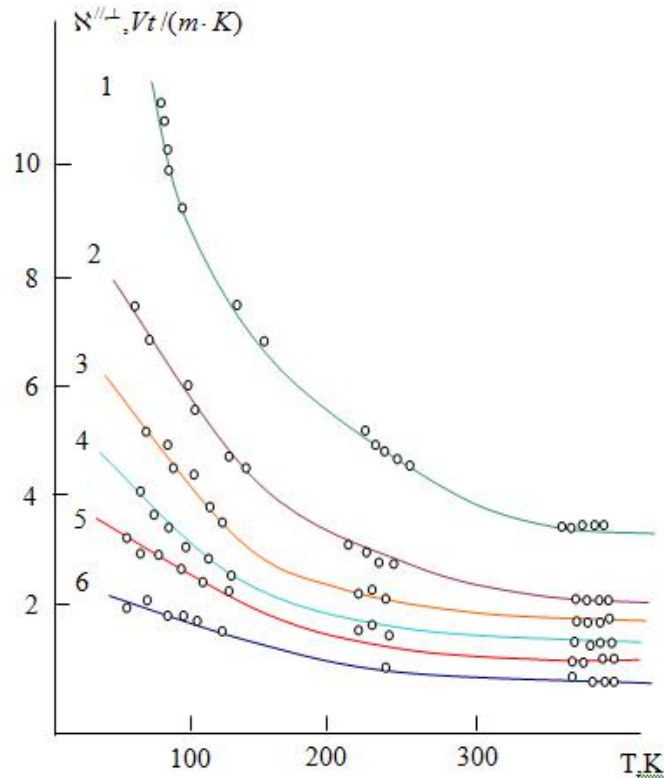
$$\frac{\chi_L}{\chi_q} = \frac{\omega}{\omega_D} \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \left[\frac{\left(\frac{\omega_D}{\omega}\right)^{2n+1}}{(2n+1)} \right]$$

kimi də ifadə etmək olar. Bu ifadədən alınan hesablamalar təcrübi nəticələrlə yaxşı uyğunluqda olduqlarından, $Tl[InSe_2]_{1-x}[YbSe_2]_x$ radikal əvəzləmə barədə söylənilən mülahizələrin reallığı bir daha təsdiq olunur.

Hesablamalar göstərir ki, baxılan bərk məhlullarda kristal qəfəsdə sıxlığın lokal dəyişmələrinin qəfəs istilikkeçirməsinə təsirinin nəzərə alınması təcrübi nəticələri və nəzəri hesablamaları xeyli yaxşılaşdırır. Amma bütün tərkiblərdə hələ müəyyən qədər istilik müqaviməti qalmaqda davam edir. Buna səbəb istilikkeçirməyə N - proseslərin təsiridir. Məlumdur ki, normal proseslər fononların səpilməsinə birbaşa təsir etmirlər. Amma normal proseslər nəticəsində fononların dalğa vektorları elə dəyişirlər ki, onlar sonralar U - proseslərdə iştirak etmək imkanı qazanırlar və bu, dolayı yolla normal proseslərin istilik müqavimətinin artmasına təsiri kimi qiymətləndirilir. Tədqiq etdiyimiz $TlIn_{1-x}Yb_xSe_2$ tərkibli bərk məhlullarda bu halların müşahidəsi üçün real imkan yaranır.



Şəkil 2. $TlIn_{1-x}Yb_xSe_2$ bərk məhlullarında laylara paralel χ^{\parallel} və perpendikulyar χ^{\perp} istiqamətlərdə istilikkeçirmə əmsallarının nisbətini $\chi^{\parallel} / \chi^{\perp}$ temperatur asılılığı



Şəkil 3. TIIn_{1-x}Yb_xSe₂ bərk məhlullarında laylara paralel χ''^{\parallel} və laylara perpendikulyar χ''^{\perp} istiqamətlərdə istilikkeçirmə əmsallarının 100 K, 200K və 300K temperaturlarında tərkibdən asılılıqları.

Şəkil 2-də TIIn_{1-x}Yb_xSe₂ bərk məhlullarında istilikkeçirmə əmsallarının \vec{a} və \vec{c} oxları istiqamətindəki qiymətləri nisbətinin temperatur, şəkil 3- də isə bu kəmiyyətlərin tərkibdən asılılığı təsvir olunmuşdur. Bu asılılıqdan görüldüyü kimi, istilikkeçirmədə müşahidə olunan anizotropluq aşağı temperaturlarda və ilkin TIInSe₂ birləşməsində ən böyükdür. Amma həm temperaturun yüksəlməsi, həm də tərkiblərdə itterbium atomlarının nisbi miqdarının artması ilə anizotropluq azalır. Eyni zamanda tərkiblərin atom kütlələrinin artımı ilə anizotropluq azalır və ümumi istilikkeçirmə əmsalının qrafiklərində müşahidə olunan bu azalma nəzəriyyə ilə yaxşı uyğunluq təşkil edir.

NƏTİCƏLƏR

Müəyyən olunmuşdur ki, TIIn_{1-x}Yb_xSe₂ tərkibli bərk məhlullarda, ilkin TIInSe₂ birləşməsində olduğu kimi istilik əsasən kristal qəfəsin istilik rəqsləri ilə daşınır, ilkin komponentlərdə fononların səpilməsində əsas rolü üçfononlu keçid prosesləri (*U*-prosesləri), bərk məhlullarda isə Debay temperaturundan yüksək temperaturlarda *U*- proseslərlə yanaşı normal proseslər və nöqtəvi defektlərdən (kristal qəfəsdə indium atomları ilə əvəzlənməsi zamanı yaranan sıxlığın lokal dəyişməsindən) səpilmələr əsas rol oynayır.

- [1] M.M. Зарбалиев. Российская АН Неорганические материалы. 1999, т. 35, №5, с.560-564.
- [2] M.M. Зарбалиев. Российская АН Неорганические материалы. 2000, т.36, №5, с.619-623.
- [3] Дж. Дрابل, Г. Гольдсмит. Изд. «ИЛ», 1963, 268 с.

- [4] P.G. Klemens. Phys. Rev. 1960, v.119, №2, p.507-510.
- [5] M.M. Зарбалиев. Дисс. на соиск. уч. степ. Доктора физ-мат. Наук Баку, БГУ, 2001, 284с.

A.M. Ahmedova, K.S. Imanova

THE SPECIFICS OF HEAT CONDUCTION IN SOLID SOLUTIONS OF SYSTEM TIInSe₂-TIYbSe₂

The given paper is devoted to the investigation of heat conduction in solid solutions of TIIn_{1-x}Yb_xSe₂ system. The phonon scattering mechanism in them is determined.

The diagram of "Composition-heat conduction" of the system of TIIn_{1-x}Yb_xSe₂ in the solubility region is constructed.

It is established that in solid solutions of TIIn_{1-x}Yb_xSe₂ with the increase of ytterbium content in the compositions the lattice heat conduction and temperature exponent decrease.

А.М. Ахмедова, К.С. Иманова

ОСОБЕННОСТИ ТЕПЛОПЕРЕНОСА В СИСТЕМАХ TlInSe₂-TlYbSe₂

Работа посвящена исследованию теплопроводности твердых растворов системы TlInSe₂-TlYbSe₂. Определены механизмы рассеяния фононов в них. Построена диаграмма «Состав- тепловые свойства» данной системы в области растворимости.

Установлено, что в твердых растворах TlIn_{1-x}Yb_xSe₂ по мере роста содержания иттербия в составах решеточная теплопроводность и показатель степени в ее температурной зависимости значительно уменьшается.

Обнаружено, что в этих твердых растворах при температурах выше дебаевской в рассеянии фононов, одновременно с трехфононными процессами переброса, активную роль играют нормальные процессы и рассеяния на точечных дефектах.

Qəbul olunma tarixi: 28.04.2016