

UOT 541.123.6:546.65'87'24

YbTe-SnSb₂Te₄ SİSTEMİNİN FİZİKİ-KİMYƏVİ TƏDQIQI

G.İ.İbadova, Z.S.Əliyev, U.A.Quliyeva, G.M.Şükürova, Z.T.Həsənova, M.B.Babanlı

Bakı Dövlət Universiteti

AZ 1148 Bakı, Z.Xəlilov küç, 23; e-mail: info@bsu.az

DTA, RFA və skanədicci elektron mikroskopiya üsulları ilə Yb-Sn-Sb-Te dördlü sistemi YbTe-0.5SnSb₂Te₄ politermik kəsiyi üzrə tədqiq edilmişdir. Müəyyən edilmişdir ki, SnSb₂Te₄ birləşməsinin inkonqruent əriməsi ilə əlaqədar olaraq bu kəsik qeyri-kvazibinardır, lakin solidusdan aşağıda stabildir və ilkin komponentlərin heterogen qarışığından ibarətdir. SnSb₂Te₄-də itterbium telluridin həllolması otaq temperaturunda ~1 mol.% təşkil edir.

Açar sözlər: faza diaqramı, itterbium tellurid, qalay-stibium telluridi, tetradimitəbənzər quruluş, Yb-Sn-Sb-Te sistemi.

Ağır metalların xalkogenidləri və onlar əsasında çoxkomponentli fazalar qiymətli funksional materiallardandır. O cümlədən, A^{IV}Te-B^V₂Te₃ (A^{IV}-Ge, Sn, Pb; B^V-Sb, Bi) sistemlərində əmələ gələn laylı tetra dimitəbənzər quruluşlu üçlü birləşmələr termo-elektrik materialları kimi böyük maraq kəsb edir [1,2]. Digər tərəfdən son tədqiqatlar göstərir ki, həmin birləşmələr topoqji izolyator xassəsinə malikdirlər və yeni nəsil kvant kompüterlərində istifadə edilə bilər [3-5].

Qeyd edilən birləşmələrin müxtəlif əlavələrlə aşqarlanması və onlar əsasında yeni çoxkomponentli fazaların alınmasının fiziki-kimyəvi əsaslarının yaradılması müvafiq

sistemlərdə faza tarazlıqlarının tədqiqini tələb edir. Bu baxımından Yb-Sn-Sb-Te dörd komponentli sisteminin YbTe-SnTe-Sb₂Te₃ kvaziüçlü müstəvisi maraqlıdır.

Təqdim edilən işdə həmin sistemin YbTe-0,5SnSb₂Te₄ politermik kəsiyi üzrə faza tarazlıqlarının tədqiqinin nəticələri verilir.

Tədqiq edilən sistemin ilkin birləşmələri ətraflı öyrənilmişdir. YbTe birləşməsi ~2000K temperaturda konqruent əriyir və qəfəs periodu $a=6.366\text{Å}$ olan NaCl tipli (Pr.qr Fm $\bar{3}m$) kubik qəfəsdə kristallaşır [6]. SnSb₂Te₄ birləşməsi isə 880K-də peritektik reaksiya üzrə parçalanmaqla əriyir və tetradimitəbənzər kristal qəfəsə malikdir: $a=4.294$; $c=41.548\text{ Å}$ [7].

TƏCRÜBİ HİSSƏ

Faza tarazlıqları tədqiq etmək üçün əvvəlcə vakuumlaşdırılmış (10^{-2}Pa) kvarts ampulalarda ilkin birləşmələr sintez edilmiş və YbTe-0,5SnSb₂Te₄ kəsiyi üzrə müxtəlif tərkibli nümunələr hazırlanmışdır.

Sintez üçün yüksək təmizlik dərəcəsinə malik olan elementar komponentlərdən istifadə edilmişdir: qalay - ОБЧ-000, стибий- ОЧ-11-4, иттербий- Итб-1, теллур-ТБ-3.

Metallik itterbium kvartsı aşındırdığına görə YbTe birləşməsinin və tədqiq edilən sistemin xəlitələrinin sintezi daxili divarlarına nazik qrafit təbəqəsi çəkilmiş kvarts ampulalarda aparılmışdır. YbTe elementar komponentlərin stexiometrik qarışığını 1200K-də 10-14 saat saxlamaqla sintez edilmişdir. Reaksiya başa çatdıqdan sonra

temperatur 800K-ə qədər azaldılmış və nümunə bu temperaturda 500 saat saxlanmaqla homogenləşdirilmişdir.

SnSb₂Te₄ birləşməsi müvafiq elementar komponentləri 1000K-də birgə əritməklə sintez edilmişdir. Bu birləşmə inkonqruent əridiyindən sintezin başa çatması üçün nümunə peritektika temperaturundan ~50K aşağıda 500 saat müddətində termiki emal edilmişdir.

Sintez olunan birləşmələrin fərdiliyi RFA üsulu ilə təsdiq edilmişdir. Hər iki birləşmənin ovuntu rentgenoqramı əsasında hesablanmış kristal qəfəs parametrləri kiçik xəta çərçivəsində ədəbiyyatda verilənlərlə üst-üstə düşmüşdür.

YbTe-0,5SnSb₂Te₄ sistemin xəlitələri,

ilkin birləşmələri müxtəlif nisbətlərdə vakuum şəraitində 1300K-də birgə əritməklə (YbTe-lə zəngin nümunələri qismən əritməklə) sintez edilmiş və 800K-də uzunmüddətli (~1000s.) termiki emaldan sonra sobanı cərəyan mənbəyindən ayırmaqla soyudulmuşdur.

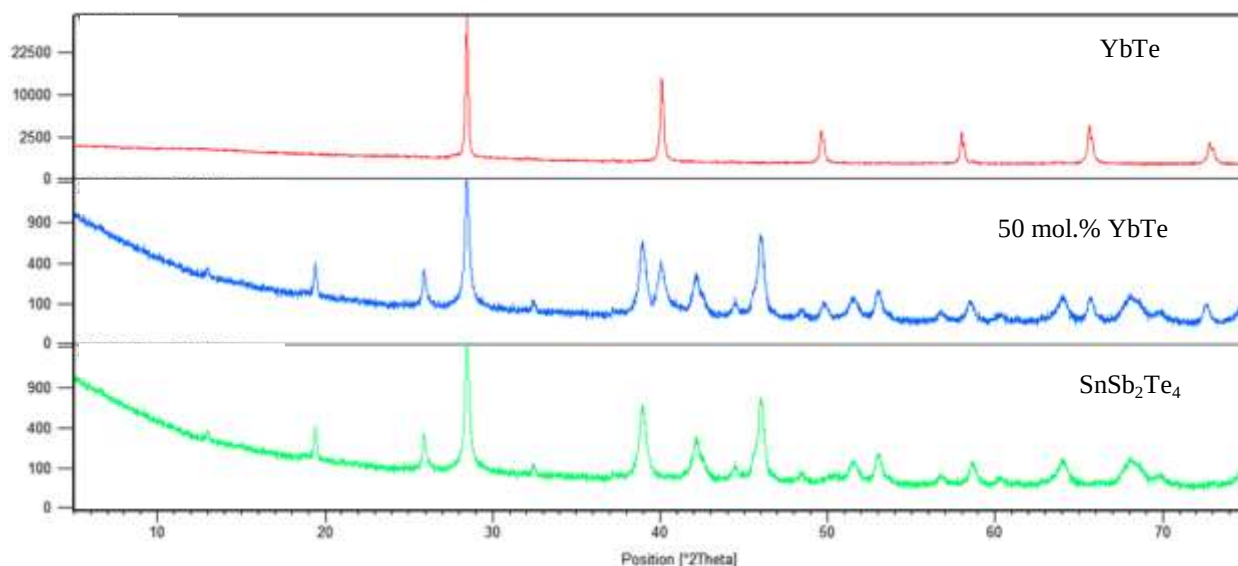
Tədqiqatlar differensial-termiki analiz

(HTP-74 pirometri, xromel-alümel termocütlər), rentqenfaza analiz (Bruker firmasının D8 ADVANCE ovuntu difraktometri, CuK_α-şüalanma) və skanəedici elektron mikroskopiya (PhilipsXL-30 FEG) üsulları ilə aparılmışdır.

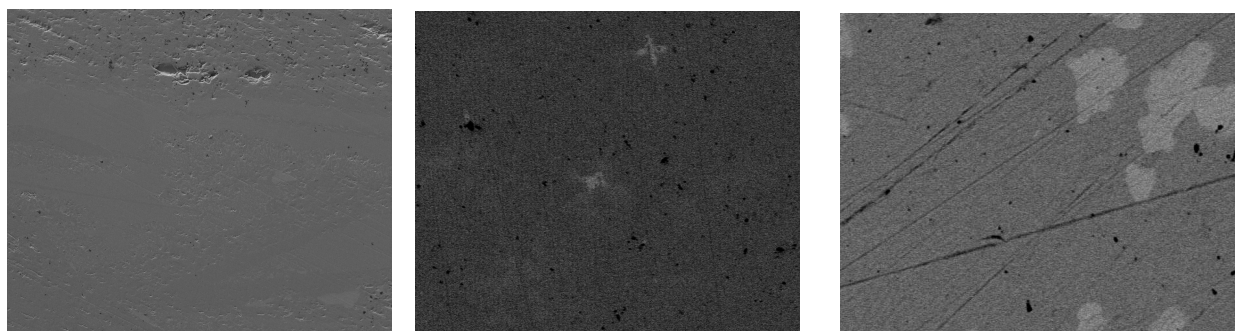
NƏTİCƏLƏR VƏ ONLARIN MÜZAKİRƏSİ

YbTe-0,5SnSb₂Te₄ sisteminin tarazlıq halına gətirilmiş xəlitələrinin ovuntu rentgenoqramlarının ilkin birləşmələrin rentgenoqramları ilə müqayisəsi göstərdi ki, 5-95 mol.% qatılıq intervalında bütün xəlitələrdə hər iki ilkin birləşmənin difraksiya xətlərinin toplusu müşahidə olunur. Bu sübut edir ki, sistemdə yeni aralıq fazalar əmələ gəlmir və xəlitələr YbTe+SnSb₂Te₄ ikifazalı qarışığından ibarətdir. Nümunə olaraq şəkil 1-də 50 mol.% YbTe tərkibli nümunənin və ilkin birləşmələrin difraktoqramları verilmişdir. Xəlitələrin difraksiya xətlərində əks olunma bucaqlarının qiymətləri ilkin birləşmələrlə üst-üstə düşür ki, bu da onlar əsasında həllolmanın cüzi olmasını göstərir.

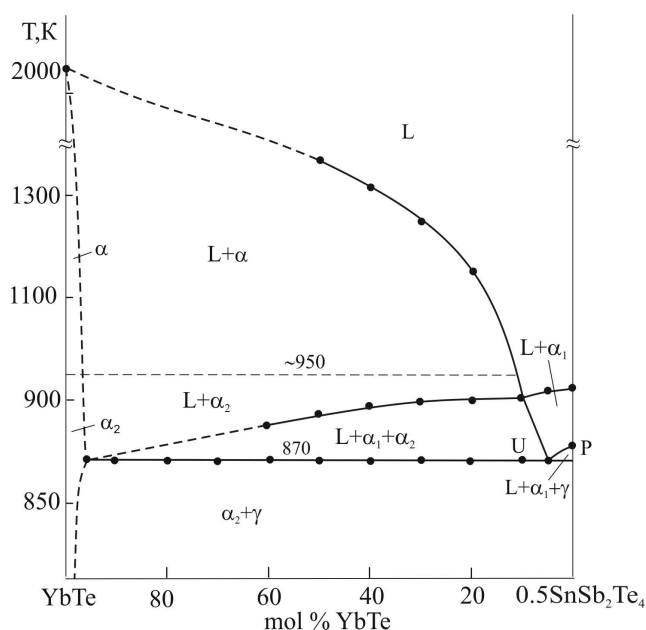
RFA üsulunun həssaslığının kiçik həllolma sahələrini təyin etmək üçün kifayət etmədiyini nəzərə alaraq SnSb₂Te₄ əsasında həllolmanı müəyyən etmək üçün SEM üsulundan istifadə olunmuşdur. Şəkil 2-də bir neçə nümunənin SEM mənzərələri verilir. Göründüyü kimi 1 mol.%YbTe tərkibli nümunə birfazalıdır, 2 mol.%YbTe tərkibli nümunədə isə əsas faza ilə yanaşı ikinci fazanın da izləri mövcuddur. 10 mol.% YbTe tərkibli xəlitədə isə ikinci fazanın miqdarı daha çoxdur. Beləliklə, hesab etmək olar ki, otaq temperaturunda SnSb₂Te₄ əsasında həllolma 1-2 mol.% arasındadır.



Şəkil 1. YbTe-SnSb₂Te₄ sisteminin bəzi nümunələrinin difraktoqramları



Şəkl 2. YbTe-0,5SnSb₂Te₄ sisteminin bəzi nümunələrin SEM nəticələri



Şəkl.3. YbTe-0,5SnSb₂Te₄ sisteminin T-x diaqramı

Nümunələrin 300-1400 K temperatur intervalında çəkilmiş qızma termoqramlarının RFA və SEM nəticələri nəzərə alınmaqla analizi YbTe-0,5SnSb₂Te₄ sisteminin T-x diaqramını qurmağa imkan vermişdir (şəkl.3). Faza diaqramından göründüyü kimi, likvidus əyrisi iki qoldan ibarətdir, YbTe-un qatılığı 10 mol.%-dən yuxarı olan sahədə ərintidən YbTe əsasında α -faza kristallaşır. [8] işinin nəticələrinə əsasən göstərmək olar ki, 950K-dən yuxarıda bu faza SnTe-YbTe sistemində əmələ gələn əvəzolunma bərk məhlullardır. 950K-dən aşağıda α -faza SnTe və YbTe əsasında məhdud bərk sahələrinə parçalandığına görə (müvafiq olaraq α_1 - və α_2) L+ α sahəsi faza diaqramında qırıq xəttlə 2 hissəyə bölünmüşdür. 0-10 mol.% YbTe tərkibli

nümunələrdə maye fazadan ilkin olaraq SnTe əsasında α_1 -faza kristallaşır.

Faza diaqramının likvidusdan aşağı hissəsindəki monovariant tarazlıq ayrılıqları soldan sağa istiqamətdə müvafiq olaraq $L+\alpha_2 \leftrightarrow \alpha_1$ və $L+\alpha_1 \leftrightarrow \gamma$ monovariant peritektik tarazlıqlarını əks etdirir. Bu proseslər nəticəsində sistemdə $L+\alpha_1+\alpha_2$ və $L+\alpha_1+\gamma$ üçfazlı sahələri formalaşır.

Sistemdə kristallaşma 870K-də $L+\alpha_1 \leftrightarrow \alpha_2+\gamma$ nonvariant keçid reaksiyası (U) ilə başa çatır və nümunələr $\alpha_2+\gamma$ ikifazlı halına keçir.

Yekunda qeyd edək ki, alınan nəticələrə görə tetradimitəbənzər quruluşlu binar Sb₂Te₃ və Bi₂Te₃ birləşmələrində YbTe-un həllolması

10mol.%-dən çox olduğu halda [9,10], həmin birləşməsində ~1mol.% tərtibindədir. tip kristal qəfəsə malik üçlü SnSb₂Te₄

İş Azərbaycan Respublikası Prezidenti yanında Elmin İnkişafı Fondunun dəstəyi ilə yerinə yetirilmişdir - Qrant № EIF-2011-1(3)-82/69/4-M-50

ƏDƏBİYYAT

1. Шевельков А.В. Химические аспекты создания термоэлектрических материалов. // Успехи химии. 2008. т.77. №1. С.3-21.
2. Rowe D.M. Thermoelectrics Handbook: Macro to Nano. CRC Press, Taylor & Francis Group: Boca Raton, FL, USA. 2006. 1008p.
3. Okamoto K., Kuroda K., Aliyev Z.S., Babanly M.B., Amiraslanov I.R. Observation of a highly spin polarized topological surface state in GeBi₂Te₄. // Phys.Rev.B. (American Phys.Soc.). 2012. v.86. p.195304-195308.
4. Ereemeev S.V., Landolt G., Aliyev Z.S. et al. Atom-specific spin mapping and buried topological states in a homologous series of topological insulators. // Nature Commun. 3:635. Doi: 10.1038/ncomms1638 (2012).
5. Menshchikova T.V., Ereemeeva S.V., Chulkov E.V. Electronic structure of SnSb₂Te₄ and PbSb₂Te₄ topological insulators. // Applied Surface Science. 2013.v. 267. p.1-3.
6. Binary alloy phase diagrams. Ed. T.B.Massalski, Second edition. ASM International, Materials park, Ohio. 1990. 3875p.
7. Шелимова Л.Е., Томашик В.Н., Грышич В.И. Диаграммы состояния в полупроводниковом материаловедении. Справочник. М.: Наука. 1991. 368 с.
8. Ибадова Г.И., Алиев З.С., Вейсова С.М. Фазовые равновесия в системе SnTe-YbTe. / X Курнаковское совещание, Самара, Сб.статей. 2013. с. 86-90.
9. Aliev Z.S., Ibadova G.I., Tedenac J.-C. et al. Solubility of YbTe in Sb₂Te₃ and thermodynamic properties of the solid solution. //Journal of Alloys and Compounds. 2011. v. 509. p.6773-6776.
10. Алиев З.С., Расулова К.Д., Имамалиева С.З. и др. физико-химическое исследование систем YbTe-SnTe(PbTe)-Bi₂Te₃. / XIV международная научно-техническая конференция «Наукоемкие химические технологии-2012», Тула – Ясная Поляна – Куликово Поле. 2012. с.270.

ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СИСТЕМЫ YbTe-SnSb₂Te₄

**Г.И.Ибадова, З.С.Алиев, У.А.Кулиева, Г.М.Шукюрова,
З.Т.Гасанова, М.Б.Бабанлы**

Методами ДТА, РФА и сканирующей электронной микроскопии исследованы фазовые равновесия по политермическому разрезу YbTe-0,5SnSb₂Te₄ четверной системы Yb-Sn-Sb-Te. Установлено, что система неквазибинарна из-за инконгруэнтного характера плавления SnSb₂Te₄, но стабильна ниже солидуса и состоит из гетерогенной смеси исходных соединений. Растворимость YbTe в SnSb₂Te₄ при комнатной температуре составляет ~ 1 моль %.

Ключевые слова: фазовая диаграмма, теллурид иттербия, теллуриды олова-сурьмы, тетрадимитоподобная структура, система Yb-Sn-Sb-Te.

PHYSICO-CHEMICAL STUDY OF YbTe-SnSb₂Te₄ SYSTEM

**G.I.Ibadova, Z.S.Aliyev, U.A.Kuliyeva, G.M.Shukurova
Z.T.Hasanova, M.V.Babanly**

Phase equilibriums by polythermal section YbTe-0,5SnSb₂Te₄ and quaternary system Yb-Sn-Sb-Te have been studied through the use of DTA, XRD methods and scanning electronic microscopy (SEM). It found that the system is non-quasibinary due to incongruent nature of SnSb₂Te₄ melting, however, it is stable below solidus and consists of heterogeneous mixture of original compounds. The solubility of YbTe in SnSb₂Te₄ is ~1 mol %. at room temperature.

Keywords: phase diagram, ytterbium telluride, tin-stibium tellurides, tetradymite-like structure, Yb-Sn-Sb-Te system.

Redaksiyaya daxil olub 06.12.2013.