

УДК 538.975

КП

№ держреєстрації 0115U000689

Інв. №

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ
СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ
40007, м.Суми, вул. Р.-Корсакова,2
e-mail: protsenko@aph.sumdu.edu.ua

ЗАТВЕРДЖУЮ

Проректор з наукової роботи,
д.ф.-м.н., професор

_____ А.М.Чорноус

З В І Т

**ПРО НАУКОВО - ДОСЛІДНУ РОБОТУ
ВПЛИВ ПРОЦЕСІВ ГРАНУЛІЗАЦІЇ І СПІН-ЗАЛЕЖНОГО
РОЗСІЮВАННЯ ЕЛЕКТРОНІВ НА ФІЗИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ
ПЛІВКОВИХ ТВЕРДИХ РОЗЧИНІВ
(проміжний)**

Начальник НДЧ,

к.ф.-м. н., с.н.с.

Д.І. Курбатов

Керівник НДР,

д.ф.-м.н., професор

І.Ю.Проценко

Суми – 2016

Рукопис закінчено 20 грудня 2016 року

Результати роботи розглянуті науковою радою, протокол № 4 від 23.12.2016 р.

СПИСОК ВИКОНАВЦІВ

Керівник НДР, головний науковий співробітник, д.ф.-м.н., професор	І.Ю. Проценко (пункти 1.1, 3.1, 3.2, висновки)
Провідний науковий співробітник, д.ф.-м.н., доцент	Л.В.Однодворець (пункти 2.1, 3.3 список посилань)
Старший науковий співробітник, к.ф.-м.н., доцент	Н.І. Шумакова (пункт 2.2, список умовних позначень)
Старший науковий співробітник, к.ф.-м.н.	О.П. Ткач (підрозділ 1.3)
Молодший науковий співробітник, к.ф.-м.н.	З.М. Макуха (підрозділ 1.4)
Інженер II категорії, завідувач лабораторіями	О.С.Лободюк (підпункт 1.2.1)
Лаборант, аспірант	Д.І. Салтиков (підпункт 1.2.2)
Лаборант, студент	К.С.Однодворець (підпункт 1.2.2)

ЗМІСТ

	С.
Перелік умовних позначень, символів, одиниць, скорочень і термінів...	4
Розділ 1. Терморезистивні властивості гранульованих плівкових сплавів на основі феромагнітних (Fe, Co) та парамагнітних (Ag, Au)...	5
1.1 Попередні зауваження.....	5
1.2 Методика і техніка експерименту.....	9
1.2.1 Методика дослідження електрофізичних властивостей.....	9
1.2.2 Мінімізація електронних шумів.....	15
1.3 Електрофізичні властивості плівок на основі Fe і Ag або Au.....	17
1.4 Електрофізичні властивості плівок на основі Co і Ag або Au.....	23
Розділ 2. Тензорезистивні властивості гранульованих плівкових сплавів на основі Fe або Co та Ag або Au.....	28
2.1 Тензоефект у плівкових системах на основі Fe і Ag або Au.....	28
2.2 Тензоефект у плівкових системах на основі Co і Ag або Au.....	34
Розділ 3. Теоретичне узагальнення досліджень термо- і тензорезистивних властивостей гранульованих плівкових сплавів.....	36
3.1 Тензоефект в одношарових і тришарових плівкових системах із різним ступенем взаємної розчинності атомів.....	36
3.2 Особливості процесів розсіювання електронів у плівкових системах в умовах дії фізичних полів	42
3.3 Прикладні аспекти експериментальних досліджень	45
Висновки	49
Перелік посилань	51

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ, СИМВОЛІВ, ОДИНИЦЬ, СКОРОЧЕНЬ І ТЕРМІНІВ

d – товщина плівки;

d_{hkl} , a – міжплощинна відстань і параметр решітки;

т.р. – твердий розчин;

T_n , T_g – температура підкладки, відпалювання;

П – підкладка;

ρ – питомий опір;

D_i – густина матеріалу плівки;

β , ТКО – термічний коефіцієнт опору;

γ , КТ – коефіцієнт тензочутливості;

μ_i – коефіцієнт Пуассона i -го шару;

n – лінійна концентрація фрагментів т.р. або гранул;

α – ступінь гранулярності зразка;

Δl_{mp} – середня довжина фрагменту твердого розчину;

ρ_g і ρ_{mp} – питомий опір матеріалу гранул і фрагментів т.р.;

β_g і β_{mp} – ТКО матеріалу гранул і фрагментів т.р. відповідно.

λ_0 , СДВП – середня довжина вільного пробігу електронів;

p – коефіцієнт дзеркальності;

r – коефіцієнт проходження межі зерен;

Q_{ij} – коефіцієнт проходження межі інтерфейсів;

МО, АМО – магнітоопір та анізотропний магнітоопір;

ГМО – гігантський магнітоопір

РОЗДІЛ 1

ТЕРМОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ ГРАНУЛЬОВАНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ НА ОСНОВІ ФЕРОМАГНІТНИХ (Fe, Co) ТА ПАРАМАГНІТНИХ (Ag, Au)

1.1 Попередні зауваження

Відкриття [1] нового типу матеріалів – гранульованих плівкових сплавів сприяло подальшому теоретичному і експериментальному вивченню не тільки явища гігантського магнітоопору (ГМО), але і магнітних та електрофізичних властивостей, таких як питомий опір (ρ), термічний коефіцієнт опору (ТКО – β), коефіцієнт тензочутливості (КТ – γ), магнітоопір (МО), намагніченість (М) та ін. Формування магнітних гранул Co чи Fe у неферомагнітній матриці у вигляді твердого розчину (т.р.) атомів парамагнітних металів (наприклад, Cu, Ag або Au) обумовлює появу нових ефектів спін-залежного розсіювання електронів (СЗРЕ) у порівнянні з мультишарами без елементів гранульованого стану. Мова іде про те, що у випадку мультишарів на величину ГМО впливають такі процеси як спін-орбітального розсіювання, обмінної взаємодії на парамагнітних домішках, електрон-магнонне розсіювання (див., наприклад, [2]). При переході до одношарових плівкових гранульованих сплавів не очікується велике значення ГМО, хоча поряд із вказаними вище механізмами розсіювання електронів з'являються два нових – розсіювання на поверхні і в об'ємі гранул [3], що призводить до додаткового зменшення (довжини спін-дифузійного пробігу електронів (λ_0^{s-d})). У квазікласичній теорії [3] допускається, що величина λ_0^{s-d} менше масштабу структурних неоднорідностей (середній радіус гранул (r_0) та немагнітні міжгранульні проміжки, або фрагменти т.р. (Δl_{ss}) між двома сусідніми гранулами). При такому допущенні не слід очікувати велике розрахункове значення ГМО у порівнянні із ГМО, отриманого у рамках квантового формалізму Кубо, в якому допускається, що $\lambda_0^{s-d} \gg r_0$.

У роботі [4] в рамках мікроскопічного підходу було теоретично показано, що у гранульованих плівках може мати місце ефект анізотропії (порядка декількох %) як МО, так і ГМО, тобто їх величина залежить від орієнтації струму у площині плівки відносно намагніченості. Причиною АМО і АГМО є спонтанна анізотропія опору феромагнітного матеріалу в плівці. Автори [5] описали ефект від'ємного ГМО у гранульованих мікродротах, що пов'язано із СЗРЕ на локалізованих магнітних моментах атомів у міжгранулярних проміжках.

Нами запропоновані [6, 7] феноменологічні моделі для електрофізичних властивостей гранульованих одношарових плівок, які, при своїй простоті, дозволяють здійснювати порівняння із експериментами та прогнозування величин ρ , ТКО і КТ.

Основне співвідношення для ТКО можна подати у такому вигляді:

$$\beta = \beta_{ss} - \frac{4\beta_g \rho_g}{4\rho_g + \alpha\rho_{ss}} - \frac{\alpha\beta_{ss}\rho_{ss}}{4\rho_g + \alpha\rho_{ss}} + \frac{\beta_g \rho_g + \alpha\beta_{ss}\rho_{ss}}{\rho_g + \alpha\rho_{ss}}, \quad (1.1)$$

де індекси «g» і «ss» позначають матеріал гранули і т.р.; $\alpha = \frac{\Delta l_{ss}}{r_0}$ – коефіцієнт грануляризації, який розраховується на основі електронно-мікроскопічних досліджень і може бути мірою перемішування атомів магнітних і немагнітних компонент. Відмітимо, що такою ж мірою перемішування атомів може бути

величина $\frac{d_{h_1 k_1 l_1}^{NM} + d_{h_2 k_2 l_2}^M}{2}$, де d_{hkl} – міжплощинна відстань; hkl – індекси Міллера;

НМ і М – немагнітний і магнітний метал), як це запропоновано у роботі [8].

У граничних випадках величини α співвідношення (1) може бути представлена так [9, 10]:

$$\begin{aligned} \beta &\cong \beta_{ss} - \frac{4\beta_g \rho_g}{\alpha\rho_{ss}}, \alpha \gg 1; \beta \cong \beta_{ss} - \frac{\alpha\beta_{ss}\rho_{ss}}{4\rho_g}, \alpha \ll 1; \\ \beta &\cong \beta_{ss} - \frac{4\beta_g \rho_g + \beta_{ss}\rho_{ss}}{4\rho_g + \rho_{ss}} + \frac{\beta_g \rho_g + \beta_{ss}\rho_{ss}}{\rho_g + \rho_{ss}}, \alpha \cong 1. \end{aligned} \quad (1.2)$$

Поряд із теоретичними дослідженнями накопичений значний

експериментальний матеріал стосовно фізичних властивостей гранульованих плівок. Ми відмітимо декілька робіт, які носять концептуальний характер. Перш за все класична робота [11], в якій викладена концепція антиферромагнітної між шарової взаємодії у багат шарових плівкових матеріалах, в т.ч. і на основі Co і Au, тобто у плівкових системах, в яких, як стане зрозумілим (див, наприклад, [12]), можуть реалізуватися елементи гранульованого стану. Фундаментального характеру дослідження проведені авторами роботи [13] стосовно ефекту впливу матеріалу і фонові домішки на інтерфейсні властивості. Ми також будемо мати на увазі великий об'єм експериментальних досліджень із заявленої тематики нашої роботи, представлених в оглядах [12, 14-17].

Насамкінець необхідно акцентувати увагу на двох обставинах, які мають безпосереднє відношення до проблеми гранульованих плівкових сплавів. По-перше, ми будемо чітко розрізняти гранульовані тверді розчини, які формуються у системах із обмеженою розчинністю магнітної компоненти у ГЦК решітці Cu, Ag чи Au. Зерномежова і обмежена об'ємна дифузія атомів магнітної компоненти спричиняє утворення окремих сегрегацій атомів, які не розчинилися у решітці немагнітної компоненти, у вигляді нанорозмірних гранул, як правило сферичної форми. Такий гранульований плівковий сплав (ГПС) може бути сформований при одночасній конденсації компонент $(Me_1 + Me_2)/\Pi$ або при відповідній термообробці дво- чи багат шарових (наприклад, $(Me_3/Me_2/Me_1/\Pi)$ плівкових систем. Поряд із цим ми будемо використовувати термін «квазігранульовані плівки» (КГП), які формуються шляхом конденсації острівцевої плівки (ОП) магнітної компоненти на шар немагнітної компоненти із наступною верхнього шару немагнітної компоненти.

Таким чином, магнітні острівці (будем називати їх квазігранули), які, скоріше за все, будуть неправильної форми, впроваджуються у провідну матрицю (відмітимо, що це може бути і діелектрична (Д) матриця).

Відмітимо, що автори [17] також розглядають три групи гранульованих плівок: магнітні ($Me_1 - Me_2$) гранульовані плівки (1); магнітні ($Me_1 -$ діелектрик) гранульовані плівки (2) та магнітні нанокластери, які впроваджені в плівки (3). На наш погляд більш правильно групу (3) називати квазігранульованою плівковою системою. В обох випадках як гранули, так і квазігранули будуть мати певний розподіл за розмірами. Відносно великі або малі гранули і острівці будуть давати різний внесок у величину ГМО, оскільки нанорозмірні гранули і острівці можуть мати суперпарамагнітні властивості [12]. До такого висновку прийшли автори [18] при дослідженні ГМО у гранульованих плівках на основі Co і Ag.

Однією із перших робіт, в якій вивчалися електрофізичні властивості (мова іде про ТКО) гранульованих мультишарів $[Ag(4)/Co(0,2-1,0)]_{15}/P$, є робота [15]. Автори установили, що при $d_{Co} \leq 0,5$ нм залежність ТКО від d_{Co} стрибкоподібно змінює свій нахил та величину. Таку поведінку ТКО автори пояснюють супермагнітним станом гранул при $d_{Co} \leq 0,5$ нм та ефективним спін-залежним розсіюванням електронів (СЗРЕ) на магнітних гранулах. Цей висновок частково підтверджується і вимірюванням питомого опору: $\rho \cong 3,4 \cdot 10^{-7}$ Ом·м ($d_{Co} < 0,5$ нм) і $\rho \cong 2,8 \cdot 10^{-7}$ Ом·м ($d_{Co} > 0,5$ нм), тобто низькоомний спіновий канал спричиняє загальне зменшення питомого опору і, у відповідності із співвідношенням $\beta = (1/\rho)(\partial\rho/\partial T)$, – збільшення ТКО.

По-друге, в літературних джерелах спостерігається термінологічна плутанина стосовно позначення структурно-фазового складу зразків у вихідному і кінцевому стані.

Це було предметом нашого спеціального аналізу, що дозволило внести ясність у дану проблему. Пропонуємо і будемо притримуватися таких позначень:

Вихідний зразок	Зразок у кінцевому вигляді
$(Me_1 + Me_2)/П$ – одночасна конденсація двох металів; $Me_1/Me_2/П$ – двошарова система; $[Me_1/Me_2]_n/П$ – мультишар	т.р. (Me_1) або т.р. $Me_1 (Me_2)$ – неупорядкований твердий розчин на основі Me_1 ; т.р. (Me_1, Me_2) – упорядкований т.р. на основі Me_1 ; т.р. $(Me_1) + G$ або т.р. $Me_1 (Me_2) + G$ – гранульований неупорядкований твердий розчин на основі Me_1 ; т.р. $(Me_1, Me_2) + G$ – гранульований упорядкований твердий розчин на основі Me_1
Me_1 або Д/ОП Me_2/Me_1 або Д/П острівцеві плівка $(Me_2)/Me_1(Д)П$ – нанокмпозитний матеріал із окремим шаром магнітних острівців	Нанокмпозитний матеріал із впровадженими в метал Me_1 або діелектрик Д острівцями Me_2
$(Me_1 + Me_2)/П$, $Me_1/Me_2/П$ – одно- чи двошарова система	$(Me_1)_x(Me_2)_y$ – інтерметалід, т.р. $Me_1(Me_2)$ або т.р. (Me_1, Me_2)
$[Me_1/Me_2]_n/П$ – мультишар на основі компонент, які вступають у хімічний зв'язок	$(Me_1)_x(Me_2)_y$ – інтерметалід, т.р. $Me_1(Me_2)$ або т.р. (Me_1, Me_2)

З нашої точки зору, неправильно позначати зразки у вихідному стані символами сплаву $(Me_1 - Me_2)$ або інтерметаліду $(Me_1)_x(Me_2)_y$, як це роблять багато авторів.

1.2 Методика і техніка експерименту

1.2.1 Методика дослідження електрофізичних властивостей

Для отримання та термообробки плівкових зразків на основі Fe або Co та Ag або Au застосовувалися методи пошарової та одночасної конденсації компонент. З цією метою використовувалися надвисоковакуумна установка (тиск залишкових газів 10^{-5} Па) та вакуумна установка ВУП-5М.

Для осадження Ag та Au користувалися методом резистивного випарування з

вольфрамового випарника типу «гусарик», а для конденсації тугоплавких металів використовували електронно-променеву гармату. Швидкість осадження становила 1-5 нм/с, що дало можливість більш точно контролювати товщину зразків (d), яка вимірювалася двома методами: методом кварцового резонатора в процесі конденсації та оптичної інтерферометрії.

Кожен з методів дає свою похибку $\pm 0,1$ та ± 1 нм відповідно, яка залежить від конструктивних можливостей приладів. Для електроннографічних досліджень плівкові зразки конденсували на мікроскопічні мідні сіточки з наперед нанесеним шаром вуглецю товщиною до 20 нм. Для отримання гранульованого плівкового сплаву свіжосконденсовані зразки піддавалися термообробці до 700, 800 та 900 К з стабілізацією протягом 30 хв. Швидкість нагрівання становила 10 К/хв.

Для розрахунку концентрації атомів окремих компонент плівкових систем використовувалось співвідношення:

$$c_i = \frac{d_i \cdot D_i \cdot \mu_i^{-1}}{d_1 \cdot D_1 \cdot \mu_1^{-1} + d_2 \cdot D_2 \cdot \mu_2^{-1}}, \quad (1.3)$$

де d_i – товщина шару плівки; $D_{1,2}$ – густина металів; $\mu_{1,2}$ – молярна маса.

Для підтвердження розрахункових значень проводились дослідження елементного складу зразків на растровому електронному мікроскопі РЕММА-102 JEOL, який обладнаний відповідними приставками та використовується для аналізу елементного складу речовини за довжиною хвилі або енергії квантів характеристичного рентгенівського випромінювання з подальшою обробкою за допомогою спеціального програмного забезпечення. Прискорююча напруга складала 20 кВ, діапазон збільшень – 1000 крат з часом експозиції запису спектру 100 с. На рис. 1.1 зображений приклад ЕДС спектру від плівкового зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, відпаленого до температури 800 К. Розрахунки, проведені за формулою (1.3), показали наступні результати: $c_{\text{Fe}} = 53$ ат. %, що задовільно узгоджується з даними рис. 1.1 і табл. 1.1, які були отримані методом енергодисперсійного аналізу.

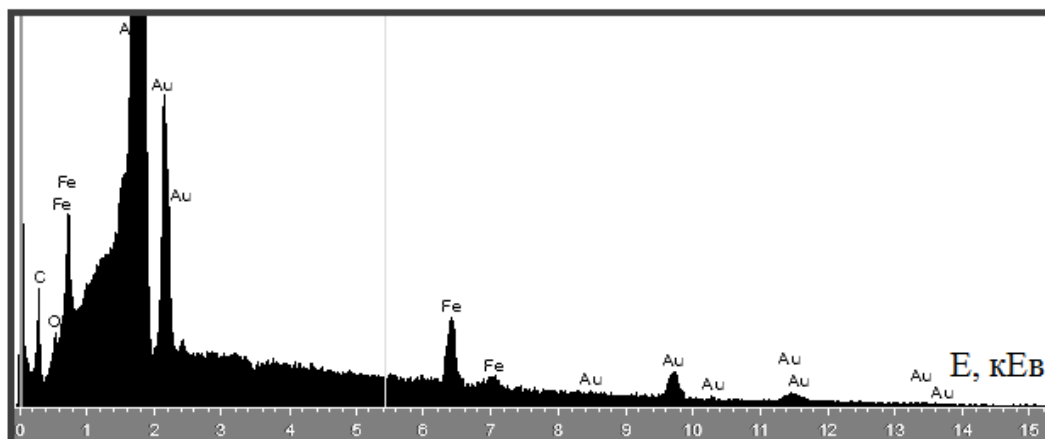


Рис. 1.1. Енергодисперсійний спектр від зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, термовідпаленого до 800 К

Таблиця 1.1

**Розшифровка ЕДС спектру від плівкового зразка
Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, термовідпаленого до 800 К**

Характеристики спектру	Атомна концентрація c_{Fe} , ат. %	Атомна концентрація c_{Ag} , ат. %
Середнє значення концентрації	46,3	53,7
Станд. відхилення	0,3	0,3
Максимальне значення c	46,6	54,0
Мінімальне значення c	46,0	53,4

Вивчення терморезистивних властивостей проводили у вакуумній камері установки ВУП-5М при тиску залишкових газів 10^{-4} Па. Для цього плівка розмірами 1 см \times 1 мм конденсувалася на ситалову підкладку 2 см \times 1 см із наперед нанесеними контактними майданчиками. Низькоомні контактні майданчики склалися з двох шарів металів. Спершу на підігріту підкладку конденсували тонку, товщиною близько 5 нм, плівку Cr для кращої адгезії, а потім відносно товстий (до 2 мкм) шар Cu. Покращення контакту «плівка / контакт» двошарової плівки Cu/Cr відбувалося шляхом сходинкоподібного осадження шарів металів. При отриманні залежності питомого опору зразків від температури використовувався пристрій, зображений на рис. 1.2. В результаті двох стабілізаційних циклів

«нагрівання ↔ охолодження» при постійній швидкості 8–10 К/хв були отримані залежності $R(T)$. Потім, використовуючи співвідношення $\beta = \frac{1}{R_n} \frac{\Delta R}{\Delta T}$ проводився розрахунок величини ТКО. Для вимірювання електричного опору застосовувався високоточний цифровий вольтметр АРРА-109 з похибкою вимірювання опору $\pm 0,06\%$. Температуру контролювали за допомогою хромель-алюмелевої термопари та цифрового вольтметра УТ-70В, що забезпечувало прийнятну точність ± 1 К.

Для дослідження тензорезистивних властивостей використовувалися підкладки двох типів. Це полістиролові та сталеві підкладки, принцип формування яких описаний вище в пункті 2.1.2. Використання металевих

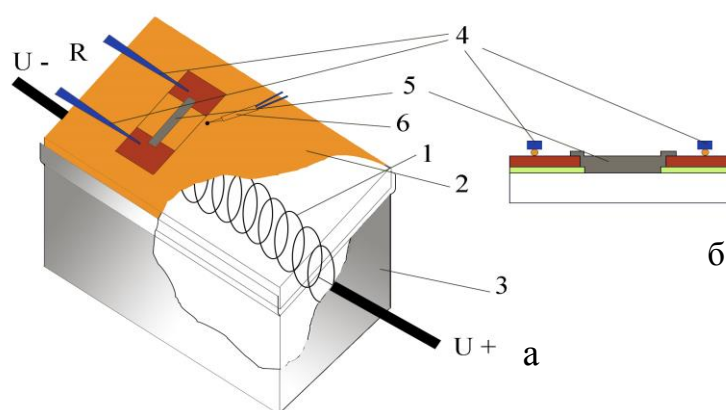


Рис. 1.2. Схема пристрою для відпалювання плівкових зразків зверху (а) і збоку (б): 1 – вольфрамова спіраль; 2 – столик; 3 – екрануючий кожух; 4 – притискні контакти; 5 – зразок; 6 – термопара

підкладок впливало з мети даної роботи. Це дало можливість безпосередньо досліджувати термовідпалені зразки до високих температур (700, 800 та 900 К), при яких, як відомо, утворюється т.р.

Більш детально зупинимося на використанні автоматизованого комплексу для дослідження тензорезистивних властивостей. На полістиролову відшліфовану та знежирену підкладку розміром 7 см × 2 см × 0,4 мм спочатку наносились мідні низькоомні контактні майданчики, а потім осаджувалася

плівка. Вимірювання опору проводили за чотириточковою схемою за допомогою позолочених контактів. Для отримання більш точних експериментальних даних при дослідженні тензорезистивних та магніторезистивних властивостей використовувалися автоматизовані комплексні системи для дослідження відповідних характеристик. Автоматизований комплекс, який більш детально описаний в роботі [116], складається з наступних основних частин (рис. 1.3):

1. Система контролю та вимірювання товщини плівки, що конденсується (включає в себе кварцеву пластину, зовнішній генератор та частотомір);
2. Система зворотного зв'язку комп'ютера з вакуумною установкою;
3. Персональний комп'ютер з відповідним програмним забезпеченням, розробленим в середовищі програмування LabView.

Більш детально зупинимося на другому блоці, який зображений на рис. 1.3. Основу автоматизованої системи складає 8-канальний 16-бітний сигма-дельта АЦП ADAM-4018, з допомогою якого за чотириточковою схемою вимірювався опір зразків, перетворювач інтерфейсів USB → RS 232/422/485 ADAM-4561, асинхронний двигун типу Д-219П1У3 та web-камера. Управління автоматизованим комплексом здійснювалося з допомогою комп'ютера під управлінням програми, розробленої в середовищі програмування LabView 2012 з використанням модуля машинного зору LabView Vision Development Module 8.2.

Підкладка з системою контактів та зразком одним кінцем фіксувалася до підкладкотримача, а другим – кріпилася до штоку мікрогвинта, який, у свою чергу, був під'єднаний до електродвигуна. Web-камера фіксувала переміщення мікрогвинта з частотою 10 кадрів/с. Одночасно з процесом розпізнання поділок на мікрогвинті фіксувався також опір зразків. Автоматизована система в одному вимірювальному циклі дає змогу досліджувати одночасно три різні тонкоплівкові зразки. Дана система дозволяє проводити дослідження тензоефекту в динамічному або статичному режимах із швидкістю деформації

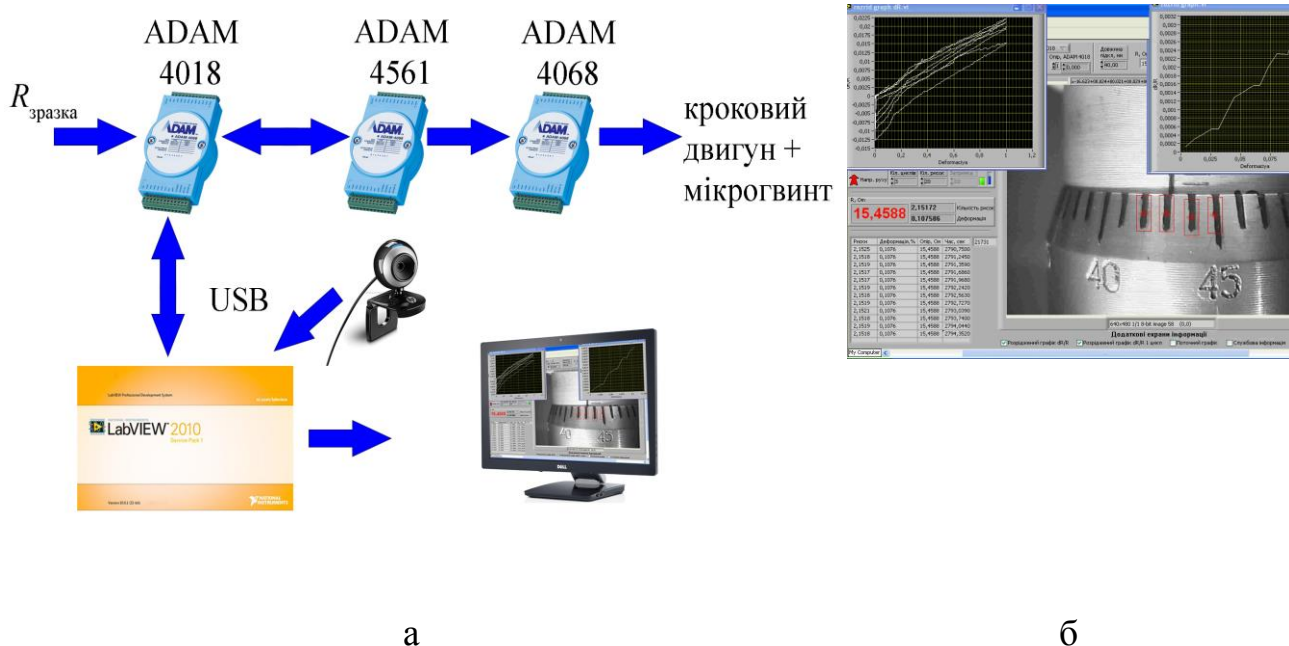


Рис 1.3. Автоматизований комплекс для дослідження тензорезистивних властивостей: структурна схема автоматизованої системи (а); інтерфейс програми (б)

від 0 до 0,1 %/с. Вона також дозволяє дослідити робочий ресурс плівкових зразків як чутливих елементів тензодатчиків.

Диференціальний та інтегральний коефіцієнти поздовжньої тензочутливості розраховувалися за співвідношеннями:

$$(\gamma_l)_{dif} = \frac{d \ln R_i}{d \varepsilon_{li}} \quad \text{та} \quad (\gamma_l)_{int} = \frac{R(\varepsilon_{li}) - R(0)}{R(0) \cdot \varepsilon_l},$$

де індекс «і» позначає деформаційний інтервал $d\varepsilon_l$. Приклади деформаційних залежностей та залежності $(\gamma_l)_{dif}$ від ε_l наведені на рис. 1.4.

При вивченні тензорезистивного ефекту плівкові зразки на основі Fe і Au отримувалися методом одночасної конденсації у вакуумі 10^{-4} Па відомої маси Fe і Au із наперед заданою розрахунковою концентрацією компонент ($c_{Fe} = 20 - 85$ ат.% із кроком 5 ат.%). Точність розрахункових концентрацій контролювалась методом РМА, що дало можливість дослідити концентраційну залежність величини γ_l ГЦК т.р. Au (Fe), ОЦК т.р. α -Fe(Au) та квазіаморфного сплаву на основі α -Fe.

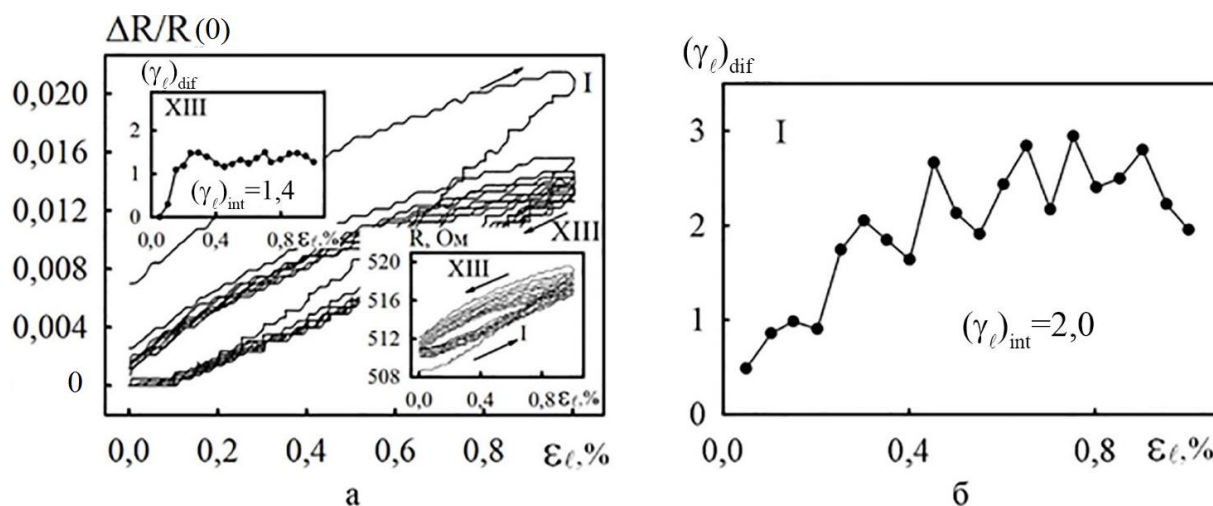


Рис.1.4. Приклад залежностей $\Delta R/R(0)$, $(\gamma_{lm})_{dif}$ і R від ϵ_l (а) та залежності γ_{lm} від ϵ_l для I деформаційного циклу (б) для зразка Co(70)/П

Для реалізації такого фазового складу товщина зразків має величину 20 – 30 нм. При пошаровій конденсації можна реалізувати фазовий склад т.р. Au (Fe)+(α-Fe) або т.р. α-Fe (Au)+ГЦК Au.

Електронно-мікроскопічні та дифракційні дослідження проводилися на електронному мікроскопі ПЕМ-125К. Температура підкладки мала величину $T_s = 300, 450$ і 550 К.

1.2.2 Мінімізація електронних шумів

На кафедрі прикладної фізики Сумського державного університету (див., наприклад, роботу [7]) розроблений і виготовлений автоматизований програмований лабораторний комплекс, принциповою особливістю якого стала можливість автоматичного вимірювання електрофізичних і магніторезистивних властивостей плівкових матеріалів з реалізацією повороту зразка в діапазоні кутів $\pm 180^\circ$ з мінімальним кроком 1° . Нами була запропонована і розроблена схема і програмне забезпечення електронного блока для варіювання величини вимірювального струму та мінімізації електронних шумів в автоматизованому лабораторному комплексі при вимірюванні ТКО, КТ і МО нанорозмірних

плівкових матеріалів.

Важливим завданням при розробці розробці блока автоматизованої системи була розробка високостабільного джерела струму, який буде задовольняти таким вимогам: висока температурна і часова стабільність вихідних параметрів та можливість забезпечення різних інтервалів величини вимірювальних струмів при різних значеннях опорних напруг. Метод, описаний раніше в [7], дає можливість установа трьох основних величин вимірювальних струмів: 10 і 100 мкА; 1 мА. Розроблений електронний блок автоматизованого комплексу [7], на основі високостабільного джерела струму (на основі інтегрованої мікросхеми LP2951) та стабілізатора напруги (на основі мікросхеми LM 317).

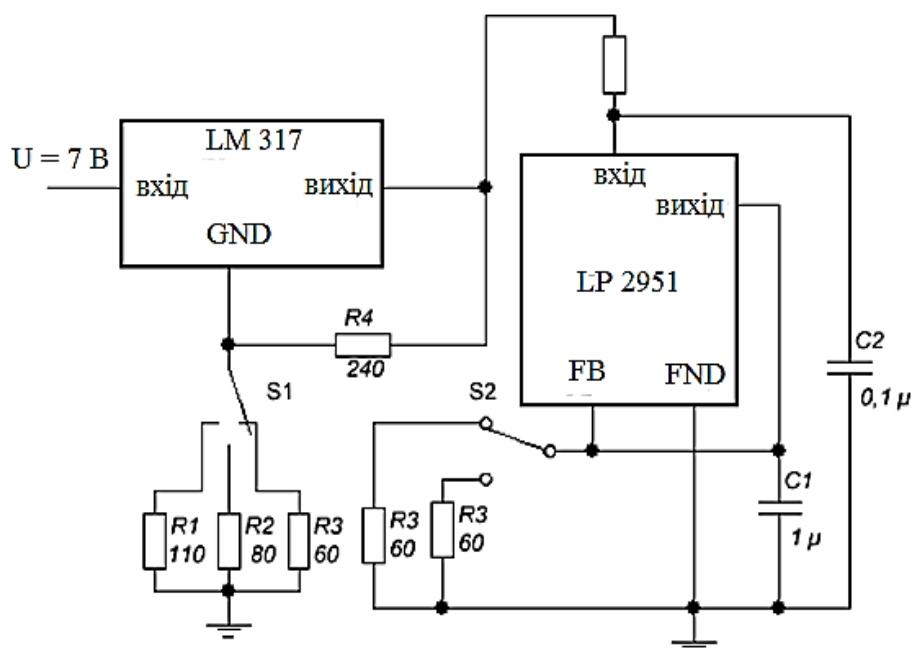


Рис.1.5. Принципова електрична схема високостабільного джерела струму зі стабілізатором опорної напруги

Принципова електрична схема і блок-схема блоку для вимірювання магніторезистивних властивостей плівок наведені на рис.1 і 2 відповідно.

Основні робочі параметри пристрою наступні: вимірювальні струми 1, 10 і 30 мА; фіксовані опорні напруги 2,8; 3,8 і 5 В; температурний дрейф джерела струму – не більше 0,01 мкА/К, робоча температура – 20°C.

Установлено, що незалежно від фазового складу плівкових матеріалів при величині вимірювального струму 10 і 100 мкА спостерігається нестабільний електричний сигнал несиметричної форми з невизначеним нульовим максимумом. При переході до струму вимірювання 1 мА сигнал згладжується, зменшується електронний шум, а при вимірювальному струмі 10 мА відбувається стабілізація електричного сигналу, що дозволяє отримати більш точні результати для температурних, деформаційних і польових залежностей питомого опору плівкових матеріалів.

1.3 Електрофізичні властивості плівок на основі Fe і Ag або Au

У літературі відома дуже обмежена кількість результатів стосовно електрофізичних властивостей гранульованих плівок на основі Fe і Ag. Мова іде про температурну залежність опору, концентраційну залежність ТКО та дослідження тензоефекту. Одна із таких робіт [19] присвячена вивченню температурної залежності провідності епітаксильної багат шарової системи Fe/Ag на підкладках GaAs (100) та GaAs (110), яка розглядається як хороший кандидат спін-поляризованого інжектора електронів в GaAs гетероструктуру. Таким чином, робота [19] не має прямого відношення до предмету нашого розгляду. До деякої міри такий же висновок можна зробити стосовно роботи [20], в якій представлені результати дослідження температурної залежності опору (інтервал температур 50-300 К) гранульованих плівок із концентрацією $c_{\text{Fe}} = 20-70$ ат.%, отриманих одночасним лазерним випаруванням. Особливість досліджень [20] полягає в тому, що плівки конденсувалися на два різних типів підкладок із р-типу Si, допированих атомами В із шаром SiO₂ (товщина 1-2 нм): підкладка товщиною 200 мкм із низьким питомим опором ($1,5 \cdot 10^{-4}$ Ом·м) та підкладка товщиною 380 мкм із високим питомим опором ($7 - 25 \cdot 10^{-2}$ Ом·м). Автори акцентують увагу на тому, що між підкладкою і шаром гранульованої плівки (товщина 120-150 нм) утворюється аморфний інтерфейс із атомів Ag, Fe і Si товщиною 7-10 нм, і, що такий інтерфейс формується при конденсації

гранульованого сплаву на основі Со і Аg. Автори спостерігали різний характер температурної залежності опору гранульованих плівок: на низькоомній підкладці опір в інтервалі 70-212 К монотонно збільшується, як і у випадку високоомної підкладки в усьому температурному інтервалі (величина ТКО приблизно $3 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$), але починаючи із температури $T > 200 \text{ K}$, різко зменшується (ТКО $\cong -8 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$). Після відпалювання плівок до 370 і 420 К характер температурної залежності в обох випадках не змінюється, лише приблизно у два рази зменшується величина опору.

Автори роботи [21] вивчали магнітні і транспортні властивості гранульованих мультишарів з різною товщиною спейсера Аg: $[\text{Ag}(2,6)/\text{Fe}(0,2)]_{75}\text{Ag}(0,8 - 2,6)/\text{Si}(111)$, де в дужках вказана товщина шарів у нм. При концентрації 10 ат.% Fe автори спостерігали високу дисперсність в ГЦК матриці Аg або областях розупорядкування. Питомий опір гранульованого композиту автори [21] представили у вигляді правила Маттісена із урахуванням електрон-магнетонного розсіювання:

$$\rho(T, B) = \rho_0 + \rho_{\text{ph}}(T) + \rho_{\text{m}}(T, B), \quad (1.4)$$

де ρ_0 – залишковий опір, який приблизно дорівнює ρ (4,2 К; В); $\rho_{\text{ph}}(T)$ – внесок у питомий опір електрон-фононої взаємодії; $\rho_{\text{m}}(T, B)$ – внесок у питомий опір електрон-магнетонної взаємодії.

Функція $\rho_{\text{ph}}(T)$ виражається співвідношенням Блоха-Грюнаїзена:

$$\rho_{\text{Ph}}(T) = a_1 \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^2 dx}{e^x - 1}, \quad (1.5)$$

де a_1 – кутовий коефіцієнт залежності $\rho(T, B)$ при $B \rightarrow 0$; Θ_D – температура Дебая.

Розрахунок $\rho_{\text{m}}(T, B)$ здійснювався за співвідношенням:

$$\rho_m(T, B) = \alpha_2 \left[s - \left(s + \frac{1}{2} \right) \coth \frac{(2s+1)g\mu_B B}{2kT} + \frac{1}{2} \coth \frac{g\mu_B B}{2kT} \right], \quad (1.6)$$

де s – загальна величина спіну; μ_B – магнетон Бора; B – індукція магнітного поля.

При деякій непереконливості у точності розрахунків (наприклад, автори брали величину $\Theta_D \approx 210$ К; використовували величини $s = 17$ або $12,5\mu_B$ для різних товщин спейсерів) у роботі [21] отримали дуже цікаві результати стосовно температурної залежності $\rho_{ph}(T)$ та $\rho_m(T, B)$. Було встановлено, що $\rho(T, 0)/\rho_0$ змінюється у межах від 1,35 ($T \cong 0$ К) до 2,07 ($T \cong 300$ К), а $\rho(T, B)/\rho_0$ – межах від 1,0 ($T \cong 0$ К; $B = 12$ Т) до 2,07 ($T \cong 300$ К; $B = 12$ Т). Дещо неочікувано малою виявилася величина $\rho_m(T, B)$ у порівнянні із ρ_0 . Наприклад, при $B = 12$ Т $\rho_m(T, B)/\rho_0 \cong 0$ (при $T \approx 0$ К) і збільшується до 0,11 (при $s = 12,5\mu_B$) або 0,24 (при $s = 17\mu_B$). Підкреслимо, що у даному випадку мова іде про СЗРЕ на магнітних моментах гранул ОЦК Fe у матриці т.р. Ag(Fe). При цьому автори враховують можливе СЗРЕ на магнітних моментах доменів т.р.

Нами були проведені дослідження температурної залежності електрофізичних властивостей (питомий опір і ТКО) гранульованих сплавів, які формувалися методами одночасної ((Ag+Fe)/П) або послідовної (Fe/Ag/Fe/П) конденсації компонент при $T_s = 400$ К із подальшою термообробкою при $T_a \cong 800$ К. Електрографічні та електронно-мікроскопічні дослідження вказують на те, що уже в процесі конденсації формується ГЦК т.р. Ag(Fe) (Рис. 1.6), хоча відомо що робота [23], в якій ілюструється відхилення від правила Вегарда у т.р. Ag(Fe), оскільки розчинність атомів Fe у ГЦК решітці Ag дуже обмежена. У той же час, аналіз відносних інтенсивностей ліній (111) і (222) (Рис. 1.6 а, с) не виключає висновку про те, що у вихідному стані до деякої міри зберігається індивідуальність окремих шарів, а перерозподіл інтенсивностей ліній пов'язаний із співпаданням міжплощинних відстаней (100)Ag і (110)Fe, (220)Ag і (200)Fe, (222)Ag і (211)Fe.

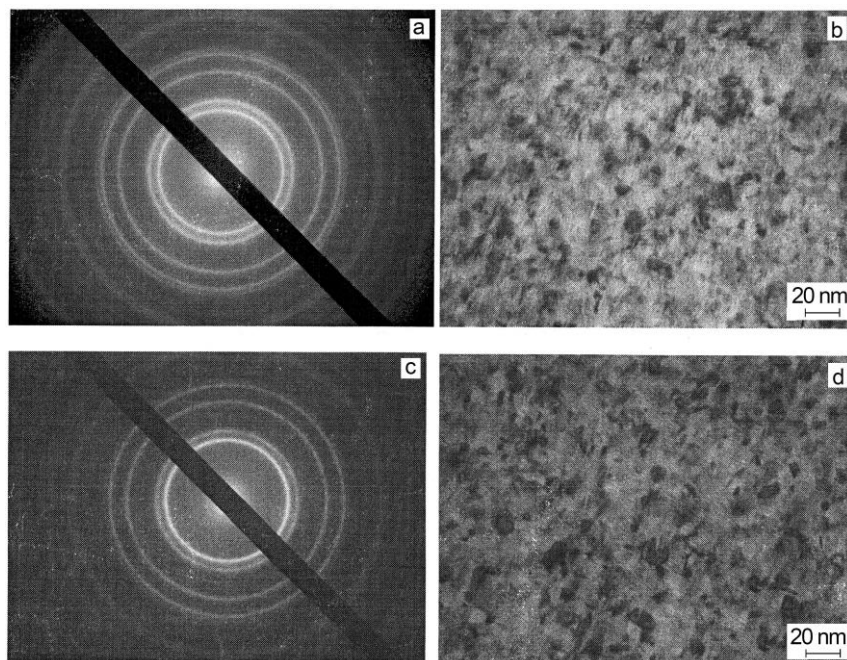


Рис.1.6. Дифракція електронів (а, с) та мікроструктура (b, d) гранульованого плівкового сплаву, сформованого при пошаровій конденсації системи Fe(5)/Ag(10)/Fe(10)/П

При цьому параметри решіток мають величину $a(\text{Ag}) = 0,4080$ нм (у масивному Ag $a_0 = 0,4086$ нм) і $a(\alpha\text{-Fe}) = 0,8710$ нм (у масивному $\alpha\text{-Fe}$ $a_0 = 0,2866$ нм, що співпадає із результатами робіт [22 - 25], в яких фазовий аналіз був здійснений на XRD [24, 25] або дифракції електронів [24, 26]. У той же час, при іонному змішуванні мультишарів певною відносно малою дозою опромінення іонами Хе [26] або Аг [24] також спостерігається двофазний стан ГЦК Ag + ОЦК Fe. Відмітимо також, що на рис. 1.6 не фіксуються чітко гранули $\alpha\text{-Fe}$, як і в роботах [24, 27] (результати робіт [27, 28] не можна розглядати як приклад формування досконалої гранульованої системи, оскільки автори впроваджували кластери Fe в матрицю Ag). У роботах [22, 24] спостерігалися гранули неправильної форми, як на рис. 1.6. Автори [25] моделювали гранули у вигляді частинок сферичної і еліптичної форми, які мають складну будову (Рис.1.7) і можуть дотикатися.

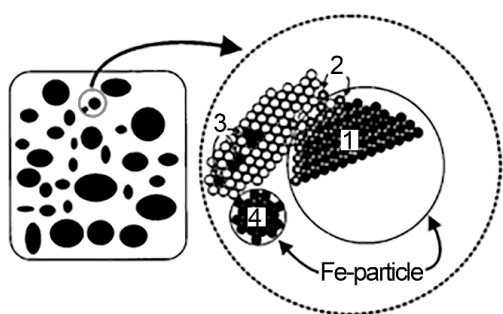


Рис.1.7. Структура гранул Fe у т.р. (Ag): 1 – масивний α -Fe; 2 – інтерфейс на межі гранули α -Fe і т.р. (Ag); 3 – атоми Fe у решітці т.р. (Ag); 4 – гранула γ -Fe. Із роботи [36]

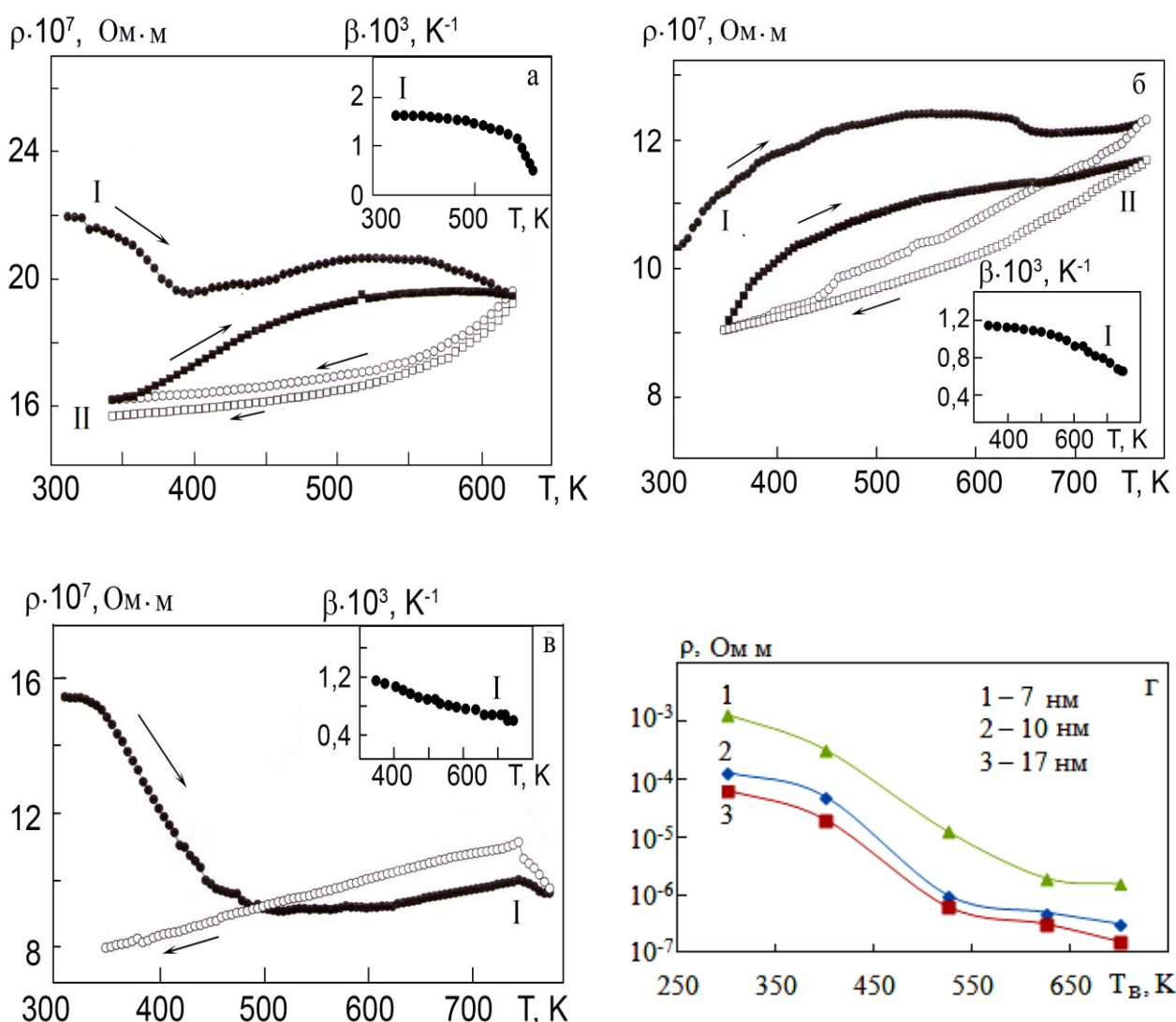


Рис. 1.8. Температурна залежність ρ і ТКО для плівкових систем, сформованих у вигляді тришарової плівки: Fe(5)/Ag(5)/Fe(5)/П (а); Fe(5)/Ag(10)/Fe(10)/П (б); Fe(10)/Ag(30)/Fe(10)/П (в) та плівок Fe (г) різної товщини. T_b – температура відпалювання. I, II – номери термостабілізаційних циклів

Температурна залежність ρ і ТКО для зразків, сформованих пошаровою конденсацією у вигляді тришарової плівки Fe/Ag/Fe/П, представлені на рис. 1.8. Не дивлячись на суттєву відміну величини ρ згідно наших і даних роботи [14], оскільки діапазон товщин відрізняється на один-два порядки, то зерномежеве і поверхневе розсіювання електронів дає значний внесок у величину питомого опору.

Нами була здійснена на прикладі плівкових систем на основі Fe і Cu та Co і Ag апробація співвідношень (1.2) і отримана хороша відповідність експериментальних і розрахункових даних. Результати [29] вказують на таку ж задовільну відповідність і у випадку плівок на основі Ag і Fe. Узагальнені результати із деякими даними роботи [14] представлені у таблиці 1.2.

Таблиця 1.2 – Електрофізичні властивості гранульованих плівок

№	Плівкова система у вихідному стані (нм)	Заг. товщина т.р., нм	c_{Fe} , at. %	T_e , К	T_a , К	$\rho \cdot 10^7$, Ом·м	$\beta \cdot 10^3$, К ⁻¹
1	Fe(5)/Ag(5)/Fe(5)/П	15		300	300	15,64	1,6
				500	500	16,52	1,4
				800	800	19,41	0,4
2	Fe(5)/Ag(10)/Fe(10)/П	25		300	300	9,03	1,2
				500	500	9,65	1,1
				800	800	11,25	0,7
3	Fe(10)/Ag(30)/ Fe(10)/П	30		300	300	7,96	1,2
				500	500	8,84	1,1
				800	800	9,95	0,6
4	Fe/Ag/П	200 – 1000	20	300	320	3,13	[14]

1.4 Електрофізичні властивості плівок на основі Co і Ag або Au

Типову температурну залежність питомого опору для плівок на основі Co і Ag або Au проілюстровано на рис. 1.9. При нагріванні протягом першого циклу в інтервалі температур 300 – 600 К має місце незначне збільшення питомого опору, а потім зменшенням на проміжку 600 – 850 К, що може бути пов'язано із залікуванням дефектної структури і процесами рекристалізації, які спричиняють зменшення внеску зерномежового розсіювання носіїв струму у загальний опір системи. При охолодженні питомий опір монотонно зменшується, що пояснюється завершенням релаксаційних процесів вже на першому циклі термообробки. На рис.1.10 представлені типові результати, які ілюструють розмірні, температурні та концентраційні ефекти у ТКО гранульованих плівкових сплавів.

На рис. 1.11 представлена експериментальна залежність ТКО від ефективної концентрації атомів Co у плівкових системах, отриманих при послідовній (точки 1 і 3) або одночасній (точки 2 і 4) конденсації плівкових систем із загальною товщиною 40 – 50 нм. Ці результати із точністю до 10 % узгоджуються із розрахунковими на основі співвідношення (1.1). У системах на основі Co та Ag або Au через обмежену взаємну розчинність, про що говорилося вище, відбувається гранулоутворення. Приклади мікрознімків з великою роздільною здатністю гранульованих сплавів на основі Co та Ag або Au представлені на рис. 1.10. У процитованих роботах [25, 26] була проведена кореляція між структурно-фазовим станом та магніторезистивними властивостями. На рис. 1.10 б зображена кластерна структура гранул. У багатошарових плівкових системах та сплавах на основі Co і Ag або Au через обмежену взаємну розчинність відбувається активне гранулоутворення. Відмітимо, що автори [26] спостерігали тонку структуру гранул (рис. 1.10 в), яка полягає в тому, що гранули розміром $D = 20\text{--}25$ нм складаються із 20–30 кластерів розміром 3 нм. Подібну, але не так чітко виражену, кластерну

структуру гранул спостерігали також автори [27] (рис. 1.10 б). На рис.1.11 представлені концентраційні залежності ТКО для гранульованих т.р. на основі Fe і Ag та Fe і Au загальною товщиною 15 – 25 нм.

Аналіз мікрознімків вказує на те, що у відпалених зразках середня відстань між гранулами Co складає $l = 10\text{--}30$ нм, а відношення $D/l = 0,7\text{--}1$ або 1 для відпалених сплавів на основі Co і Ag [26]. У плівках на основі Au і Co магнітні гранули Co мають дещо менші розміри у порівнянні із плівками на основі Ag і Co, в яких розміри гранул 3 – 6 нм, і сильно залежать від умов формування плівок (рис.1.12).

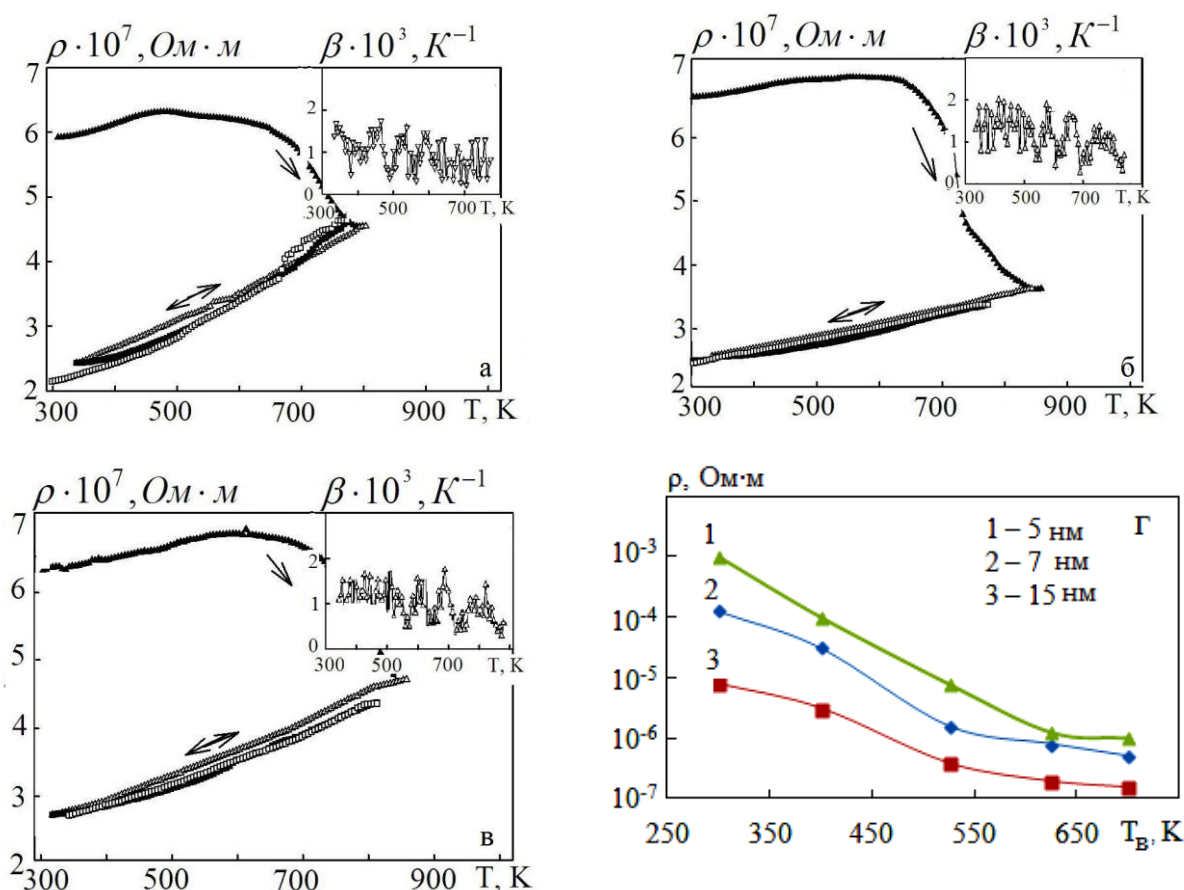


Рис. 1.9. Залежність питомого опору та ТКО (на вставках) від температури для плівок Ag(34)/Co(15)/П (а), Ag(21)/Co(18)/П (б) та [Ag(22)+Co(15)]/П (в) та залежність ρ від T_B одношарових плівок Co (г). Ефективна концентрація атомів Co, ат. %: 32 (а), 52 (б) і 45 (в)

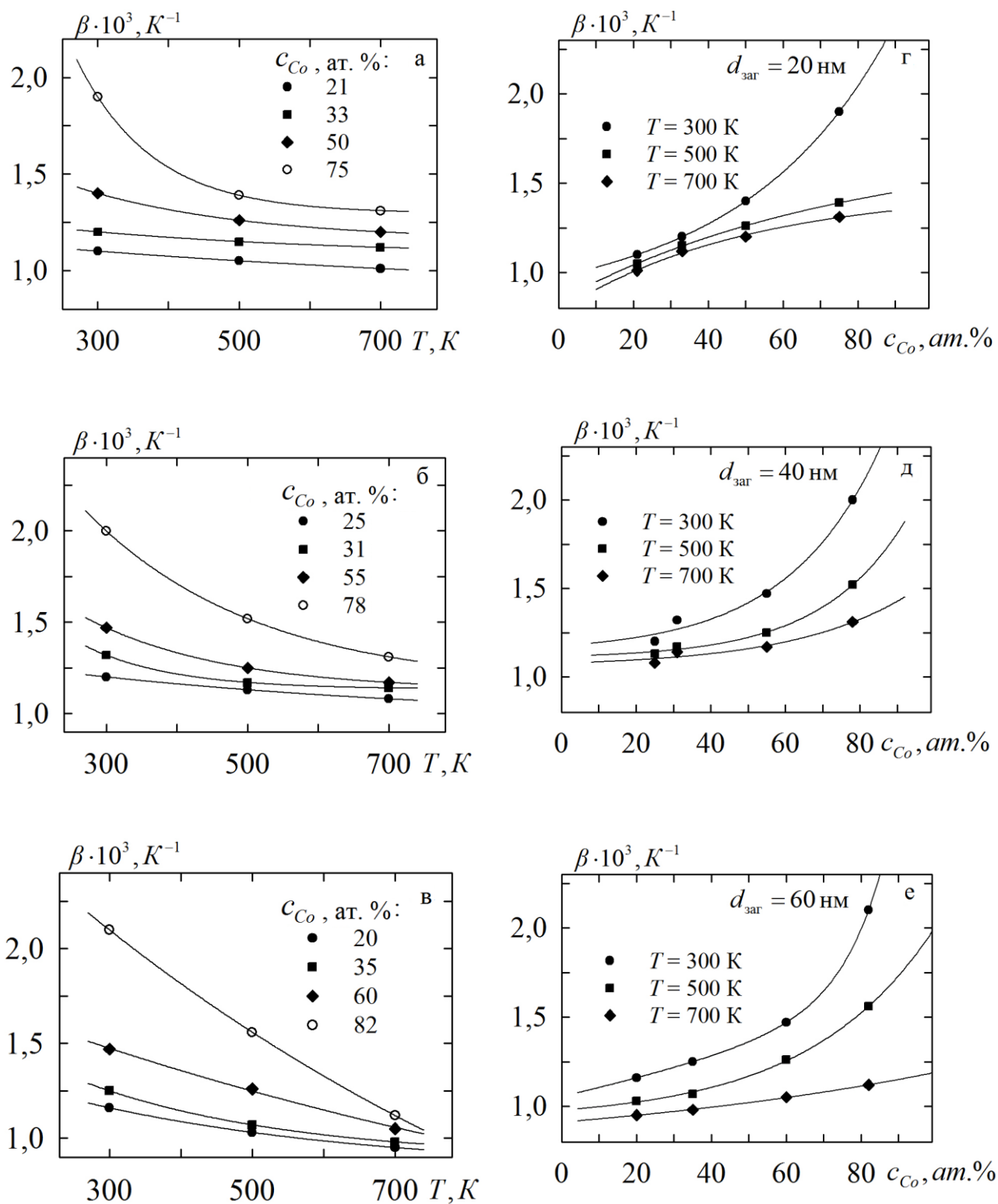


Рис.1.10. Температурні концентраційні залежності ТКО для двокомпонентних плівкових систем у вихідному стані Ag/Co/P з різною концентрацією атомів Со та загальною товщиною $d = 20$ (а, г), 40 (б, д) і 60 нм (в, е)

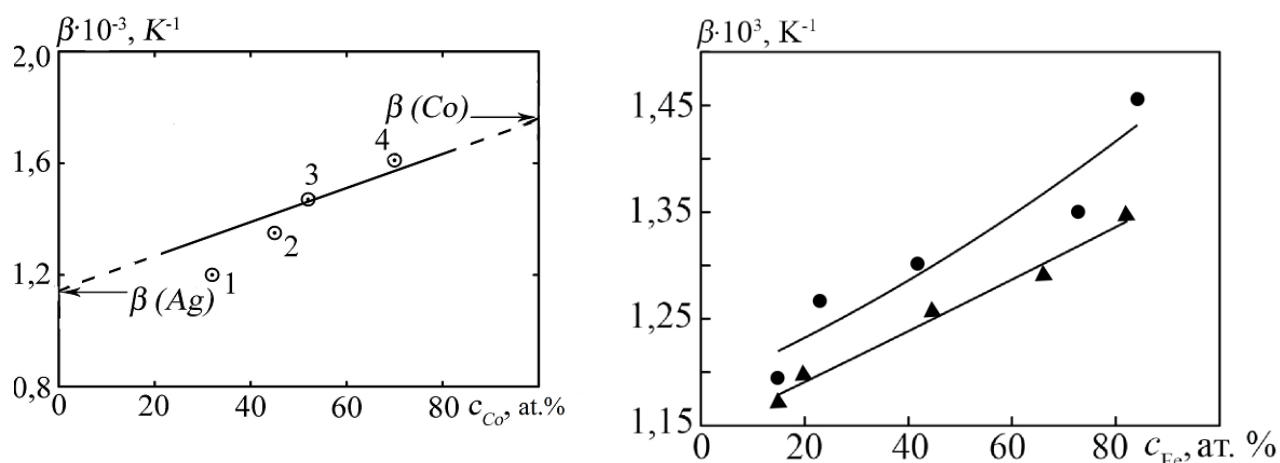


Рис. 1.11. Концентраційна залежність β при $T = 300$ К для гранульованих т.р. на основі Co і Ag (а) та Fe і Au (б): точки 1 і 3 (послідовна конденсація) та 2 і 4 (одночасна); величини $\beta(Ag)$ і $\beta(Co)$ відповідають плівкам товщиною 40 нм (а); загальна товщина плівок $d = 15$ (●) і 25 нм (▲) (б)

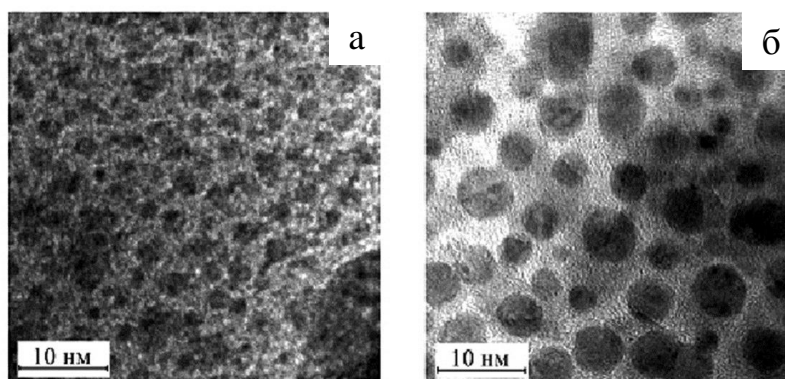


Рис. 1.12. Мікроструктура гранульованого сплаву на основі Ag і Co (а, б) [25] у невідпаленому (а) та відпаленому до 600 К (б) [26]

У роботі [30] мова йде про наносплав Co і Au у вигляді плівок товщиною 50 нм з різним процентним відношенням компонент. Так середній розмір гранул в сплавах навіть після відпалювання до температур 870 К не перевищує 4 нм.

Насамкінець відмітимо, що легка реалізація гранулярного стану фази Co, що має більші значення магнітної насиченості та магнітної анізотропії у порівнянні, наприклад, з Fe, в низькоомних матрицях Cu, Au чи Ag є причиною великого розповсюдження таких систем як матеріалів з ГМО. Але не

виключено, що вирішальним для ГМО є саме можливість утворення гранульованих т.р.

У роботах [32, 33] детально вивчено вплив процесів росту і відпалювання на структуру і магнітні властивості мультишарів $[\text{Co}/\text{Au}]_n/\text{П}$ з ультратонким шаром $d_{\text{Co}} = 0,6$ нм [32] та з товщиною $d_{\text{Co}} = 0,6; 0,9$ і $1,2$ нм [33]. Установлено, що процес відпалювання дуже в значній мірі впливає на магнітні властивості. Аналогічні результати отримані у роботі [34] для випадку безструктурних плівкових систем на основі Co і Au , отриманих методом електроосадження. Детальні дослідження фазових перетворень в гранульованих сплавах на основі Fe і Au при $c = 20$ і 30 ат.% Fe проведені в роботі [35]. Із суттєвих результатів, отриманих в цій роботі, необхідно відмітити, що після відпалювання в сплаві утворювалась ГЦК-фаза, збагачена атомами заліза.

РОЗДІЛ 2

ТЕНЗОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ ГРАНУЛЬОВАНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ НА ОСНОВІ Fe АБО Co ТА Ag АБО Au

2.1 Тензоефект у плівкових системах на основі Fe і Ag або Au

Систематичні дослідження фазового складу плівок на основі Fe і Au були проведені у роботах [29-35], автори яких спостерігали формування ГЦК т.р. Ag(Fe) із параметром решітки $a = 0,400 - 0,404$ нм [29, 30, 34, 35], який при збільшенні температури до 820 К зменшується [30] до величини $a = 0,399$ нм. Очевидно, що таке зменшення можна пояснити процесами упорядкування в т.р. Ag(Fe) при відпалюванні зразків. Відмітимо, що автори [33] спостерігали в т.р. Ag(Fe) величину $a = 0,417$ нм, що, на їх думку, означає можливість формування ГЦК т.р. не тільки на основі Ag, але і γ -Fe.

Згідно даних [29,31] при збільшенні концентрації до 80 ат.% Fe [29] чи до 65 ат.% Fe [31] відбувається фазовий перехід до т.р. (α -Fe) (згідно наших даних [35] цей перехід відбувається при $c_{Fe} > 60$ ат.% (рис. 2.1), що підтверджує результат [31]). Відмітимо, що автори [31] також спостерігали початок цього фазового переходу при збільшенні c_{Fe} від 36 до 66 ат.%.

Перехід т.р. Ag(Fe) \rightarrow т.р. α -Fe(Ag) супроводжується диспергуванням кристалічної структури, і її можна трактувати як квазіаморфною (рис.2.2, 2.3). Автори [29, 31] вказують на те, що т.р. Ag(Fe) невпорядкований до концентрації приблизно 50 ат.% Fe, коли формуються нанокластери на основі впорядкованого т.р. (Fe, Au) із структурою $L1_0$ [32, 33] і параметрами тетрагональної решітки $a = 0,367$ і $c = 0,360$ нм [33]. У випадку [32] фаза $L1_0$ формувалася у мультишарах $[Fe1ML/Au1ML]_{100}$. Відмітимо, що структура $L1_0$ утворюється на основі перехідних (Fe, Co, Mn) і благородних (Pt, Pd, Au, Ir або Rh) металів. Як видно, у переліку благородних металів відсутній Ag і це означає, що у т.р. α -Fe(Ag) не відбуваються процеси упорядкування, хоча фазовий (концентраційний) перехід ГЦК т.р. Ag(Fe) \rightarrow ОЦК т.р. α -Fe(Ag) відбувається при $c_{Fe} < 50$ ат.%.

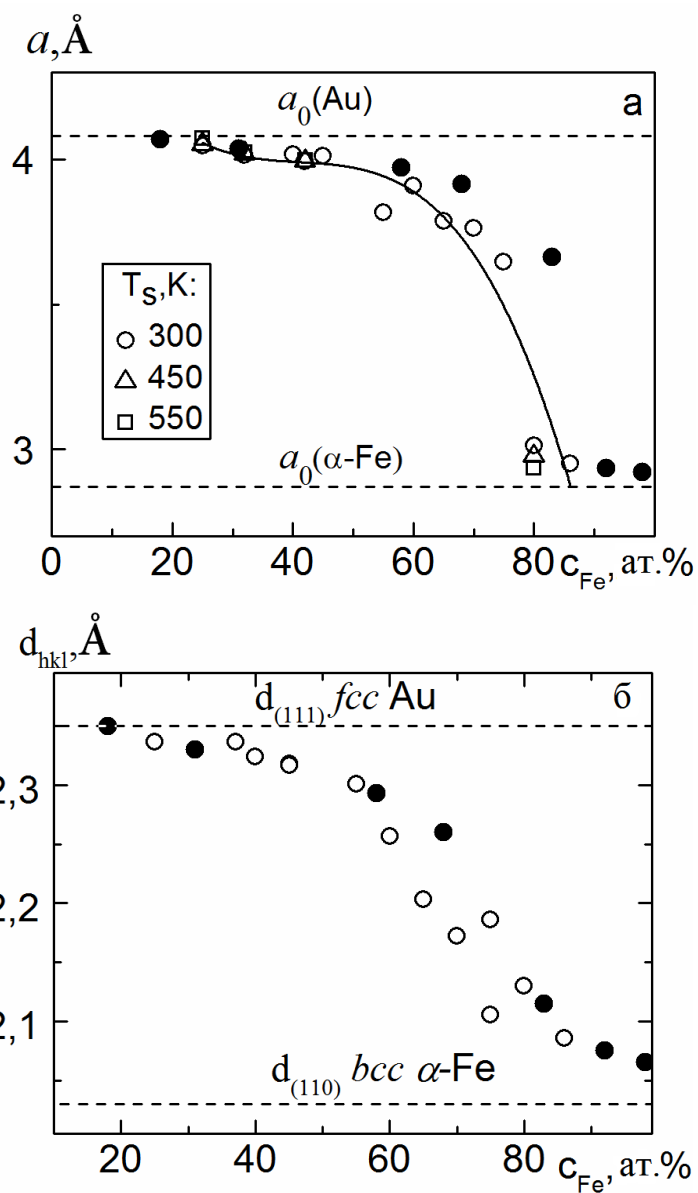


Рис.2.1. Залежність ОЦК параметра решітки (а) і міжплощинної відстані для (111) т.р. Ag(Fe) і (110) т.р. α -Fe(Ag) при 300 К. • – дані роботи [29]

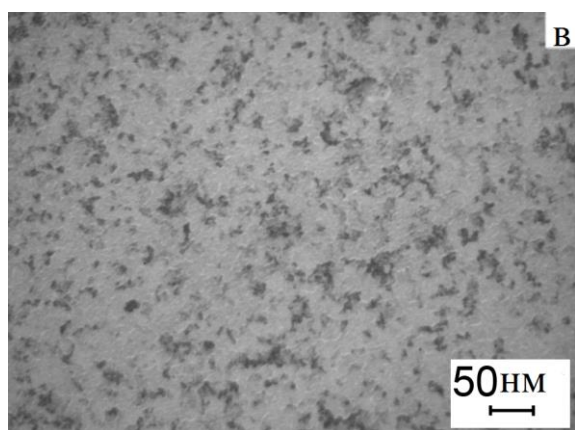
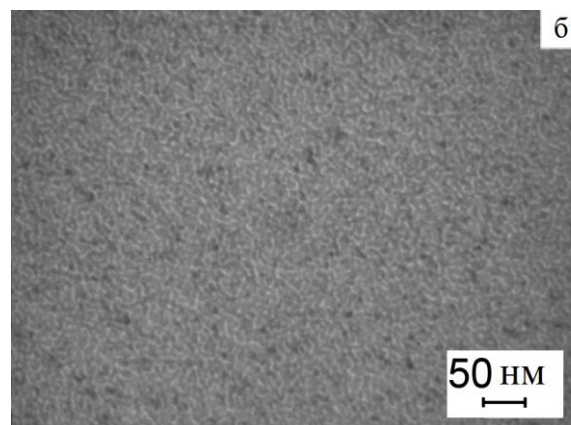
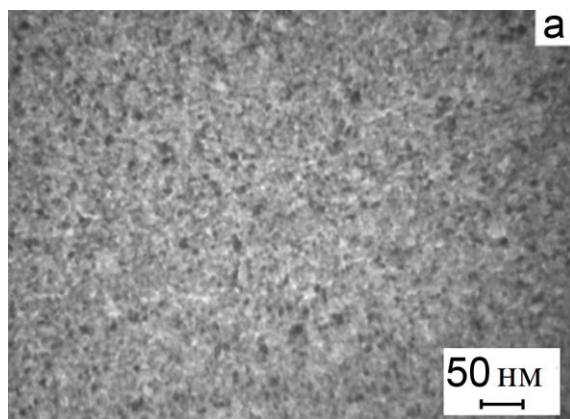


Рис.2.2. Мікроструктура плівок т.р. Au(Fe) і т.р. α -Fe (Au). Концентрація, ат.% Fe: а – 42; б – 65 і в – 80

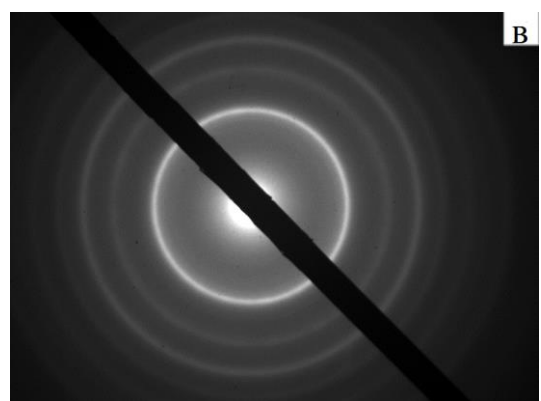
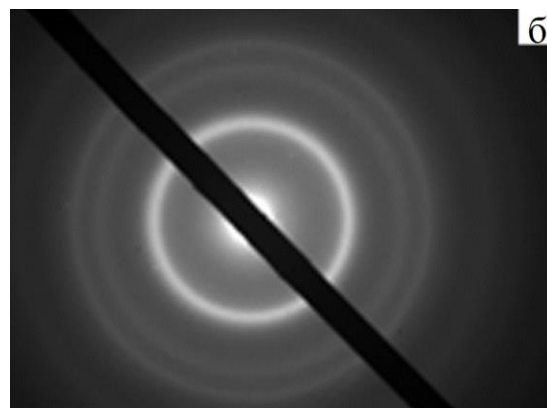
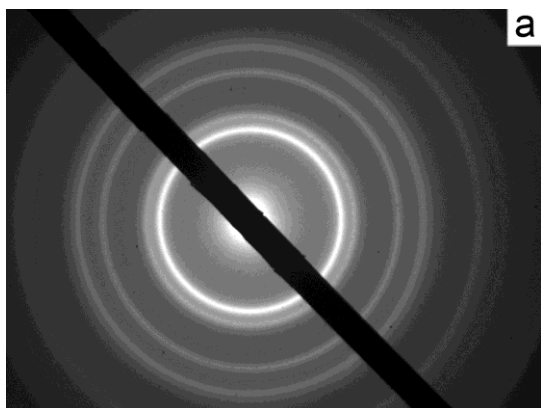


Рис.2.3. Дифракційні картини від плівок т.р. Au(Fe) і т.р. α -Fe (Au). Концентрація, ат.% Fe: а – 42; б – 65 і в – 80

Електрофізичні властивості (питомий опір, ТКО і КТ) гранульованих плівкових систем на основі Au і Fe залишалися маловивченими. Можливим поясненням цього може бути той факт, що ці властивості споріднених плівкових систем на основі Ag і Fe на даний момент достатньо вивчені і отримані результати, як ми переконалися, можна екстраполювати і на випадок гранульованих плівкових сплавів т.р. Au(Fe) чи т.р. α -Fe (Au). В той час, отримані нами результати стосовно концентраційної аномалії деформаційного ефекту в перехідній області т.р. Au(Fe) \rightarrow т.р. α -Fe (Au) дозволяють сподіватися на можливість реалізації подібних аномалій на прикладі інших властивостей. Мікроструктура і дифракційні картини від плівок т.р. Au(Fe) і т.р. α -Fe (Au) наведені на рис.2.2 і 2.3 відповідно.

Експериментальні деформаційні залежності $\Delta R/R(0)$ від ε_l ; ($R(\varepsilon_l)$ і $R(0)$ – електричний опір при деформації ε_l і при $\varepsilon_l = 0$) були отримані в області пружної і пластичної деформації. Величини деформації ε_{ltr} , при якій відбувається перехід від пружної до пластичної деформації, ми визначали за точкою перетину дотичних до двох ділянок деформаційної залежності (приклад такої процедури наведений на рис.2.4). Крім цього для уточнення величини ε_{ltr} використовувалися дані робіт [10] - [12], а для урахування розмірних ефектів у механічних властивостях користувалися аналізом, здійсненим у роботі [13].

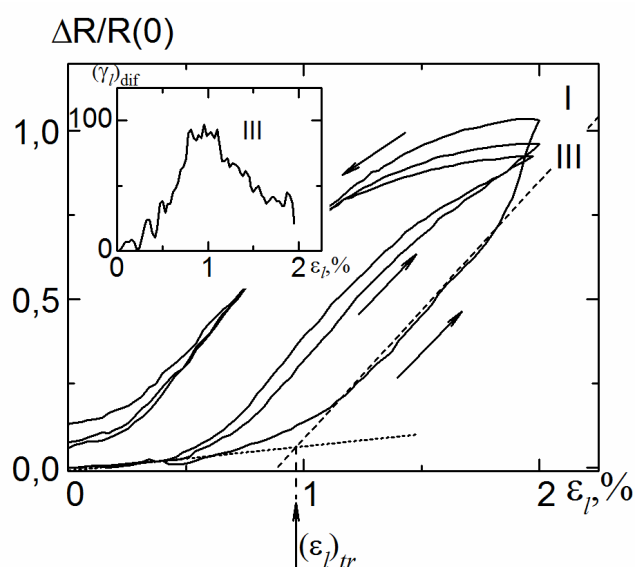


Рис.2.4. До методики визначення деформації переходу ε_{ltr} на основі деформаційної залежності опору. На вставці - залежність $(\gamma_l)_{dif}$ від ε_l . Концентрація $c_{Fe} = 70$ ат.%. I – III – номери деформаційних циклів

На рис.2.5 наведені приклади деформаційних залежностей для плівкових зразків, структурний стан яких відповідає рис.2.2 а (рис.2.5 а) або рис.2.2 б (рис.2.5 б).

Відмітимо, що максимум на залежності $(\gamma_l)_{\text{dif}}$ від ε_l спостерігалися нами і раніше [6, 7] на прикладі інших плівкових матеріалів. Природа максимуму пов'язана із переходом зразків від пружної до пластичної деформації.

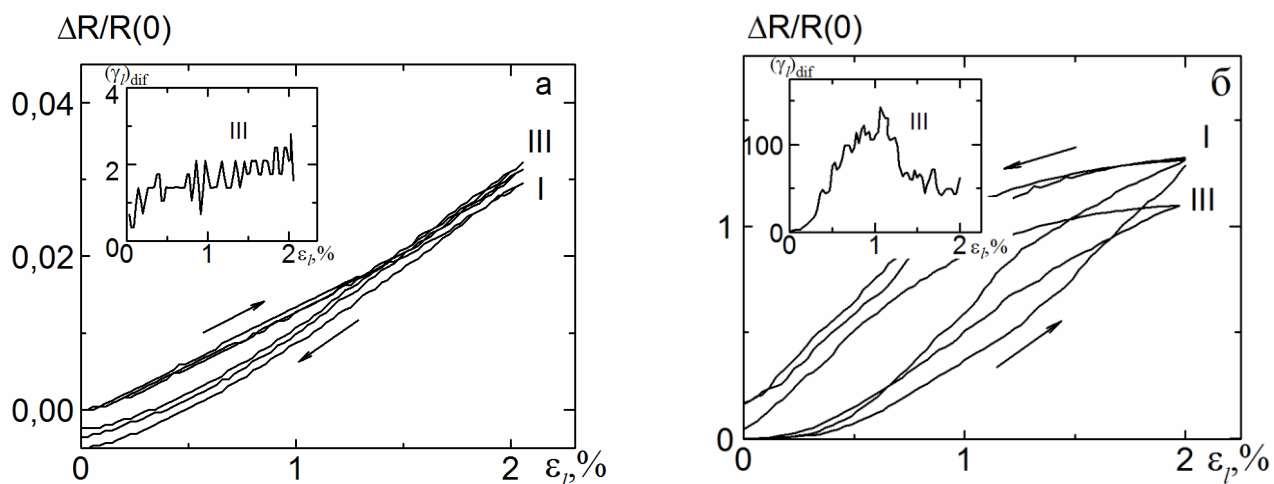


Рис.2.5. Приклади деформаційних залежностей для плівок т.р. Au(Fe). Концентрація, ат.% Fe: а - 32; б - 55. На вставці – залежність $(\gamma_l)_{\text{dif}}$ від ε_l

Результати обробки деформаційних залежностей представлені на рис.2.6, із якого витікає, що в інтервалі концентрацій $c_{\text{Fe}} \cong 55 - 70$ ат.% має місце аномальне збільшення величини $(\gamma_l)_{\text{int}}$. Цей результат можна пояснити диспергуванням т.р.-Au(Fe) при збільшенні величини c_{Fe} (рис.2.2 і 2.3). Згідно теоретичної моделі ефективного довжини вільного пробігу Тельє і Тоссе [36] величина $(\gamma_l)_{\text{int}}$ повністю визначається зерномежовим розсіюванням електронів, оскільки їх поверхневе розсіювання впливає лише на характер залежності $(\gamma_l)_{\text{int}}$ від товщини плівкового зразка. Таким чином, збільшення ефективності зерномежового розсіювання електронів в інтервалі концентрацій $c_{\text{Fe}} \cong 50 - 70$ ат.% є причиною аномального збільшення величини $(\gamma_l)_{\text{int}}$.

Виходячи із базового співвідношення для коефіцієнта поздовжньої тензочутливості

$$(\gamma_l)_{\text{int}} = -\frac{1}{\lambda_0} \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_l} + 2(1 + \mu_f), \quad (2.1)$$

можна зробити висновок про основний внесок у величину $(\gamma_l)_{\text{int}}$ деформаційного коефіцієнта $-\frac{1}{\lambda_0} \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_l}$, оскільки другий доданок, т. зв. геометричний фактор дає внесок не більше 3 одиниць. Зменшення $\Delta \lambda_0$ зумовлено безпосередньо залежністю λ_0 від ε_l (через доданок $(\Delta \lambda_0)_{\varepsilon_l}$) та непрямою залежністю λ_0 від ε_l через параметри p і r : $(\Delta \lambda_0)_{p(\varepsilon_l)}$ і $(\Delta \lambda_0)_{r(\varepsilon_l)}$.

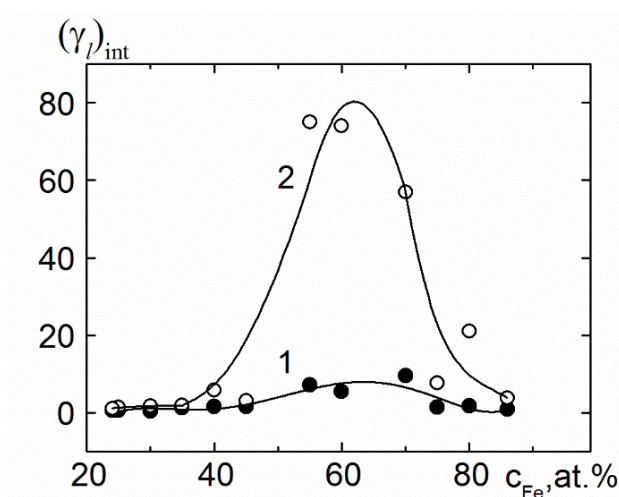


Рис.2.6. Залежність $(\gamma_l)_{\text{int}}$ від c_{Fe} при пружній (1) та пластичній (2) деформації плівок на основі Fe і Au

Таким чином, у тонких плівках ($d \cong 20 - 40 \text{ nm}$) отриманих одночасною конденсацією атомів Fe і Au формується неупорядковані т.р. ГЦК Au(Fe) та ОЦК α -Fe(Au). Структурний перехід перенасиченого т.р. Au(Fe) до α -Fe(Au) супроводжується диспергуванням зеренної структури і, як наслідок цього, спостерігається аномальне збільшення коефіцієнта поздовжньої тензочутливості. Цей ефект можна використати при формуванні чутливого елементу сенсорів переміщення або пружної або пластичної деформації.

2.2 Тензоефект у плівкових системах на основі Со і Аg або Аu

Нами були також проведені дослідження тензорезистивних властивостей гранульованих плівок на основі Аg і Со. Типові залежності $\Delta R/R(0)$, R , і $(\gamma_l)_{dif} = \frac{1}{R_i} \cdot \frac{\partial R_i}{\partial \varepsilon_{li}}$ від ε_l представлені на рис. 2.7. Отримані середні значення добре корелюють з аналогічними величинами для одношарових плівок Аg(38)/П (тобто $c_{Co} = 0$ ат.%) та Со(70)/П (тобто $c_{Ag} = 0$ ат.%), що ілюструє рис. 2.8. Із представлених результатів звертає на себе увагу дуже низькі значення $(\gamma_l)_{int}$, що можна якісно пояснити, виходячи із співвідношення (2.1), згідно якого основний внесок у величину КТ дає деформаційний коефіцієнт СДВП, який може приймати в окремих випадках величину близьку до нуля або, навіть, від'ємне значення.

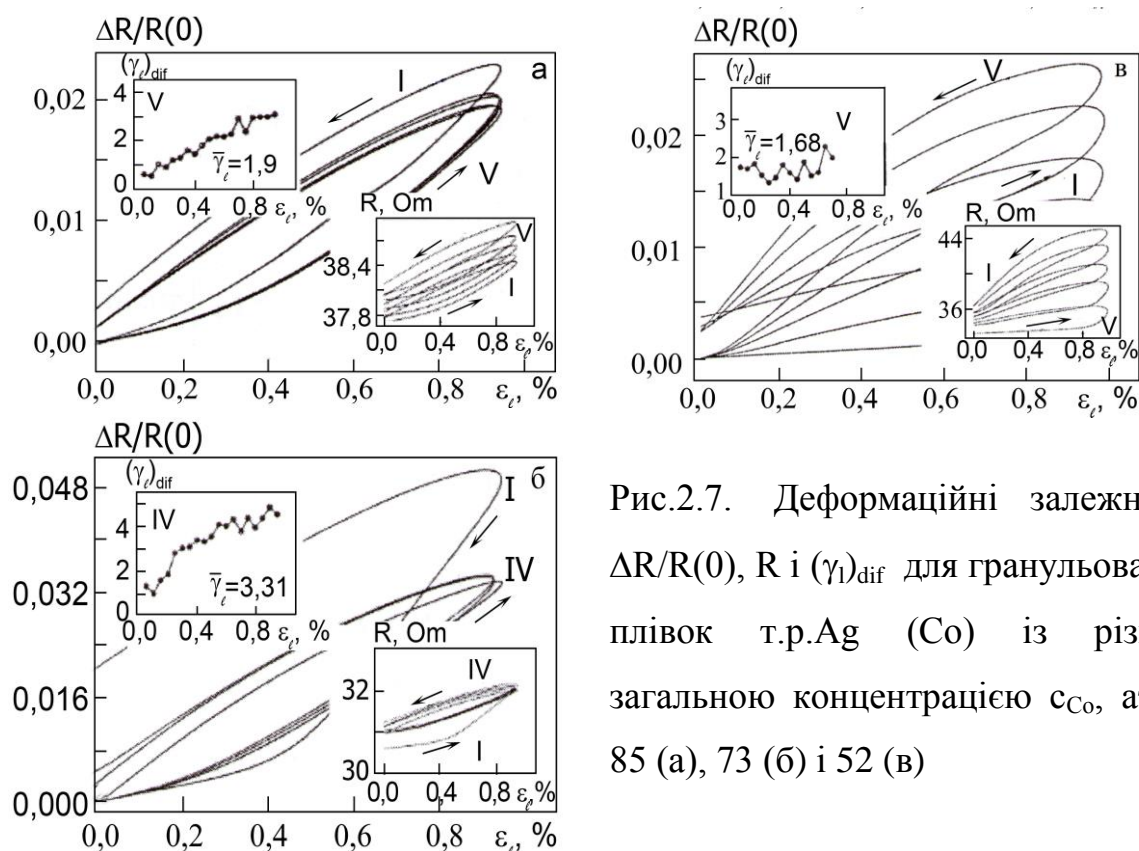


Рис.2.7. Деформаційні залежності $\Delta R/R(0)$, R і $(\gamma_l)_{dif}$ для гранульованих плівок т.р.Аg (Со) із різною загальною концентрацією c_{Co} , ат.%: 85 (а), 73 (б) і 52 (в)

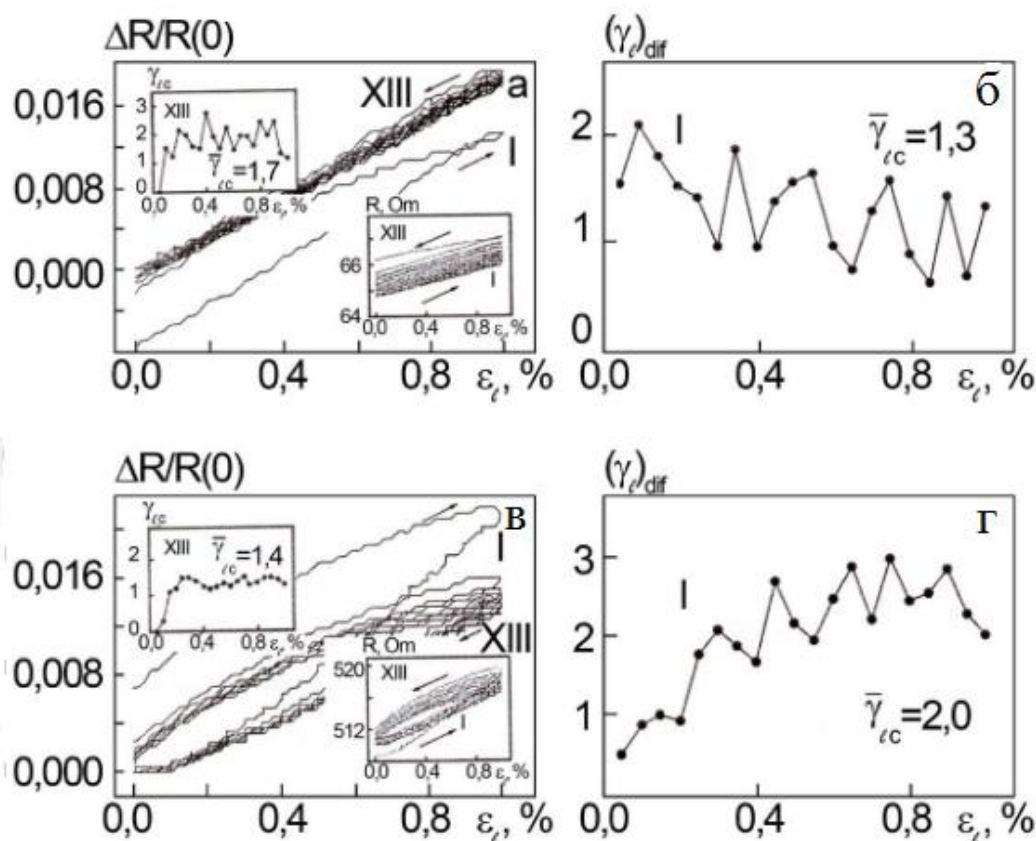


Рис.2.8. Залежність $\Delta R/R(0)$, R і $(\gamma_l)_{\text{dif}}$ від ε_l для плівки Ag(38)/П (а, б) та Co(70)/П (в, г)

Порівняння між собою величини $(\gamma_l)_{\text{int}} = 1,90$ ($c_{\text{Co}} = 85$ ат.%) і $3,31$ ($c_{\text{Co}} = 52$ ат.%) дозволяє стверджувати, що ефективна концентрація атомів Co (а як наслідок – концентрація гранул) виступає основним фактором впливу на деформаційну залежність СДВП. Якісно це можна пояснити, але для аналітичного опису необхідно користуватися поняттям про деформаційну залежність λ_0 , коефіцієнтів p і r (більш детально у підрозділі 3.2).

РОЗДІЛ 3

ТЕОРЕТИЧНЕ УЗАГАЛЬНЕННЯ ДОСЛІДЖЕНЬ ТЕРМО- І ТЕНЗОРЕЗИСТИВНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ ГРАНУЛЬОВАНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ

3.1 Тензоефект в одно- і тришарових плівкових системах із різним ступенем взаємної розчинності атомів

Плівкова система на основі магнітної і немагнітної компонент моделюється як шарувата структура товщиною d на основі плівкового гранульованого т.р. (рис.3.1). Таким чином зразок представляє собою паралельне з'єднання $N = \frac{d}{2r_0}$ окремих шарів. У свою чергу, окремий такий шар можна змодельювати (рис.3.2,а) як паралельне з'єднання n трубок струму (рис.3.2,б).

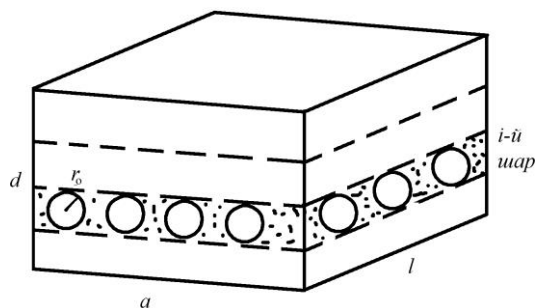


Рис.3.1. Моделювання плівкового зразка гранульованого твердого розчину у вигляді шаруватої структури. l , a і d – довжина, ширина і товщина зразка; r_0 – середній радіус гранули

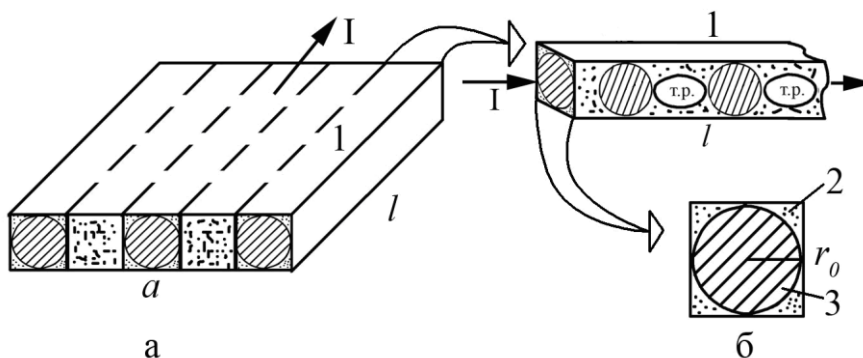


Рис. 3.2. Схематичне зображення окремого шару (а), трубки струму (1), її поперечного перерізу (б) із чотирма боковими (2) та центральним (3) стержнями. I – сила струму

В основі феноменологічної моделі електрофізичних властивостей гранульованих плівкових сплавів, запропонованої авторами [6], лежать наступні положення:

– плівковий зразок моделюється у вигляді шаруватої структури, окремий шар (рис. 3.1) якої подається у вигляді паралельного з'єднання трубок струму, кожна з яких складається із послідовного з'єднання фрагментів т. р. і гранул із середнім радіусом r_0 (рис. 3.2 б);

– розрахунок опору гранули (R_g) сферичної форми проводиться шляхом інтегрування елемента опору по об'єму гранули.

Нами раніше [6] було отримане наступне співвідношення для питомого опору шаруватої структури, представленої на рис.3.1 та 3.2:

$$\begin{aligned} \rho &= 4,65(2 + \alpha) \cdot \rho_{mp} \cdot \left(4 + \frac{4,65\pi l \rho_{mp}}{r_0 n (\rho_g + \alpha \rho_{mp})} \right)^{-1} = \\ &= A(2 + \alpha) \rho_{mp} \cdot \left(4 + \frac{B \rho_{mp}}{\rho_g + \alpha \rho_{mp}} \right)^{-1}, \end{aligned} \quad (3.1)$$

де $A = 4,65$ і $B = 4,65\pi$ – параметри форми зразка;

n – лінійна концентрація фрагментів т.р. або гранул, тобто $n = l/r_0 = l/\Delta l_{mp}$;

$\alpha = \frac{\Delta l_{mp}}{r_0}$ – т.зв. ступінь гранулярності зразка (Δl_{mp} – середня

довжина фрагменту т.р. в трубці струму);

ρ_g і ρ_{mp} – питомий опір матеріалу гранул і фрагментів т.р.;

β_g і β_{mp} – ТКО матеріалу гранул і фрагментів т.р. відповідно.

Після диференціювання співвідношення (3.1) по деформації можна отримати співвідношення для КТ, який виражається через питомий опір:

$$\gamma_l^p = \frac{d \ln \rho}{d \varepsilon_l} = \frac{d \ln(2 + \alpha)}{d \varepsilon_l} + \frac{d \ln \rho_{ss}}{d \varepsilon_l} - \frac{\rho_{ss} \gamma_l^{\rho_{ss}} (\rho_z + \alpha \rho_{ss}) - \rho_{ss} \cdot \gamma_l^{\rho_z} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \varepsilon_l} \rho_{ss} + \alpha \cdot \gamma_l^{\rho_{ss}} \cdot \rho_{ss} \right) \cdot \left[4 + \frac{B \cdot \rho_{ss}}{(\rho_z + \alpha \rho_{ss})} \right]^{-1}}{(\rho_z + \alpha \rho_{ss})^2} \cdot (-B). \quad (3.2)$$

Співвідношення (3.2) дещо спрощується, якщо врахувати, що параметр α не залежить від деформації, оскільки

$$\frac{d\alpha}{d\varepsilon_l} = \frac{d}{d\varepsilon_l} \left(\frac{\Delta l_{ss}}{r_0} \right) = \frac{1}{r_0} (-\mu_{ss} \cdot \Delta l_{ss} + \mu_z \cdot \Delta l_{ss}) \cong 0, \quad (3.3)$$

де враховано, що коефіцієнти Пуассона для т. р. і матеріалу гранул приблизно однакові (відомо, що для металів $\mu = 0,25 - 0,35$). У результаті формула (3.2) спрощується до вигляду:

$$\gamma_l^p = \gamma_l^{\rho_{mp}} - \frac{\rho_{ss} \gamma_l^{\rho_{ss}} \left[\rho_z + \alpha \rho_{ss} (1 - \gamma_l^{\rho_{ss}}) \right]}{(\rho_z + \alpha \rho_{ss})^2 \left(4 + \frac{B \cdot \rho_{ss}}{\rho_z + \alpha \rho_{ss}} \right)}. \quad (3.4)$$

При аналізі (3.4) ми розглянемо три граничні випадки ($\alpha \gg 1$, $\alpha \cong 1$ та $\alpha \ll 1$):

$$\begin{aligned} \gamma_l^p &\cong \gamma_l^{\rho_{ss}} \left(1 - \frac{\alpha (1 - \gamma_l^{\rho_g})}{4\alpha + B} \right), \alpha \gg 1; \\ \gamma_l^p &\cong \gamma_l^{\rho_{ss}} \left(1 - \frac{\rho_{ss} \rho_g}{\rho_g^2 (4 + B)} \right), \alpha \ll 1; \\ \gamma_l^p &\cong \gamma_l^{\rho_{ss}} \left(1 - \frac{\rho_{ss} \left[\rho_g + \rho_{ss} (1 - \gamma_l^{\rho_g}) \right]}{(\rho_g + \rho_{ss})^2 \left(4 + \frac{B \rho_{ss}}{\rho_g + \rho_{ss}} \right)} \right), \alpha \cong 1, \end{aligned} \quad (3.5)$$

Апробація даної феноменологічної моделі була проведена для плівкових зразків на основі Co та Ag, в яких після термовідпалювання до 700 К і вище стабілізується т. р. з елементами гранульованого стану. Приклад розрахунків КТ для плівкових систем на основі Ag і Co представлений в таблиці 3.1. Відмітимо, що величину $\gamma_i^{\rho_{ss}}$ розраховували на основі співвідношення

$$\gamma_i^{\rho_{ss}} = \frac{\gamma_{i1}^{\rho}}{1 + c_2 \rho_2 / c_1 \rho_1} + \frac{\gamma_{i2}^{\rho}}{1 + c_1 \rho_1 / c_2 \rho_2}, \quad (3.6)$$

яке отримують після диференціювання по деформації співвідношення для питомого опору т.р. $\rho = c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2$.

Таблиця 3.1

Результати розрахунків за феноменологічною моделлю (3.4) і (3.6)

Зразок	c_{Co} , ат. %	α	Розрахунок	
			$\gamma_i^{\rho_{ss}}$	γ_i^{ρ}
Ag(20)/Co(10)/П	58	61,9	4,41	5,21
Ag(40)/Co(20)/П	58	41,8	2,37	2,68
Ag(18)/Co(17)/П	73	34,3	4,25	4,98
Ag(25)/Co(40)/П	81	17,5	2,54	2,86
Ag(15)/Co(40)/П	88	28,7	3,93	4,58

Як витікає із розрахунків, можна зробити висновок, що основний внесок у загальну величину КТ дає т. р. як матриця гранульованої системи. Це можна якісно пояснити, виходячи із концепції та уявлень про балістичне перенесення заряду у наногранулах, оскільки розмір гранул завжди буде менше λ_0 , тобто $r_0/\lambda_0 < 1$. Як наслідок всередині гранули реалізується балістичний механізм електроперенесення, і тому деформаційний коефіцієнт λ_0 , який дає основний

внесок у величину КТ, $\eta_{\lambda_0 l} = -\frac{1}{\lambda_0} \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_l} \cong 0$. Поряд із цим в області локалізації

т. р. реалізується звичайний механізм електропровідності, який дає основний внесок у загальну величину КТ. Якщо звернутися до літературних даних стосовно тензоефекту у плівкових системах із різною концентрацією феромагнітної компоненти (див., наприклад, [36]), то можна знайти підтвердження наших висновків. Зокрема, у плівковій системі Fe(4)/Pt(18)/П (концентрація $c_{\text{Fe}} = 22$ ат. %), в якій утворюється розбавлений т. р. із можливою стабілізацією елементів гранульованого стану (тобто $\alpha \gg 1$), величина КТ в області пружної деформації дорівнює $\gamma_i^p \cong 2,5$ одиниці. При переході до більшої концентрації $c_{\text{Fe}} \cong 61$ ат. % (система Fe(22)/Pt(18)/П) величина γ_i^p не змінюється, хоча кількість атомів Fe можуть забезпечити умову $\alpha \geq 1$. Навіть при концентрації $c_{\text{Fe}} \cong 71$ ат. %, коли можна говорити про виконання умови $\alpha \ll 1$, величина γ_i^p збільшується лише на 0,7 одиниці.

Подібний висновок якісно витікає із даних, представлених у таблиці 3.1, оскільки розрахункові дані для $\gamma_i^{\rho_{ss}}$ і γ_i^p відрізняються не більше, ніж на 18%. Але проблема полягає в тому, що наші висновки ґрунтуються на наближених результатах розрахунків, але експериментально визначити $\gamma_i^{\rho_{ss}}$ і γ_i^p неможливо.

Одним із варіантів вирішення цього питання може бути використання іншої феноменологічної моделі для дво- або тришарової плівкової системи. Виходячі із співвіношень для питомого опору таких систем

$$\rho = \frac{\rho_1 \rho_2 (d_1 + d_2)}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1} \quad \text{та} \quad \rho = \frac{\rho_1 \rho_2 \rho_3 (d_1 + d_2 + d_3)}{\rho_2 \rho_3 d_1 + \rho_1 \rho_3 d_2 + \rho_1 \rho_2 d_3},$$

та означення для γ_1

$$\gamma_i^p = \frac{d \ln \rho}{d \ln l},$$

(l – довжина плівки, $d \ln l = \frac{dl}{l} = d\varepsilon_l$ – деформація) та формули для питомого

опору сплава

$$\rho = \rho_1 c_1 + \rho_2 c_2, \quad (3.7)$$

отримуємо таке співвідношення для біпластини:

$$\begin{aligned} \gamma_i^\rho &= \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{d_1 \mu_1 + d_2 \mu_2}{d_1 + d_2} - \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 d_2 - \rho_1 d_2 \mu_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 d_1 - \rho_2 d_1 \mu_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1} \cong \\ &\cong \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 d_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 d_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1}, \end{aligned} \quad (3.8)$$

де μ_i – коефіцієнт Пуассона i -го шару, застосовуючи такі позначення:

$$A_1 = (d_1 - d_1'') \rho_C \rho_2, \quad A_2 = (d_2 - d_2'') \rho_C \rho_1 \quad \text{та} \quad A_3 = (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2.$$

У випадку одношарової плівки із твердого розчину можна отримати аналогічне співвідношення:

$$\begin{aligned} \gamma_i^\rho &= \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 c_1 + \rho_1 c_1 \gamma_{i1}^C + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 c_2 + \rho_2 c_2 \gamma_{i2}^C}{c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2} \cong \\ &\cong \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 c_1 + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 c_2}{c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2} = \frac{\gamma_{i1}^\rho}{1 + \frac{c_2 \rho_2}{c_1 \rho_1}} + \frac{\gamma_{i2}^\rho}{1 + \frac{c_1 \rho_1}{c_2 \rho_2}}, \end{aligned} \quad (3.9)$$

де $\gamma_{ii}^C = \frac{d \ln c_i}{d \ln l}$ - відносна зміна концентрації i -го елемента при деформації.

По аналогії із (3.8) і (3.9) отримуємо співвідношення для γ_i^ρ для тришарової плівкової системи, де другим шаром виступає шар т.р. біля інтерфейсу (рис.3.3):

$$\begin{aligned} \gamma_i^\rho &\cong \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{(d_1 - d_1'')(\gamma_{ic}^\rho \rho_{ss} \rho_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_{ss} \rho_2) + (d_2 - d_2'')(\gamma_{ic}^\rho \rho_{ss} \rho_1 + \gamma_{i1}^\rho \rho_{ss} \rho_1)}{(d_1 - d_1'') \rho_{ss} \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_{ss} \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2} + \\ &+ \frac{(d_1'' + d_2'')(\gamma_{i1}^\rho \rho_1 \rho_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_1 \rho_2)}{(d_1 - d_1'') \rho_{ss} \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_{ss} \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2} = \\ &= \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{A_1(\gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i2}^\rho) + A_2(\gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i1}^\rho) + A_3(\gamma_{i1}^\rho + \gamma_{i2}^\rho)}{A_1 + A_2 + A_3}, \end{aligned} \quad (3.10)$$

де $A_1 = (d_1 - d_1''') \rho_{ss} \rho_2$; $A_2 = (d_2 - d_2''') \rho_{ss} \rho_1$ та $A_3 = (d_1 - d_1''') \rho_{ss} \rho_2$.

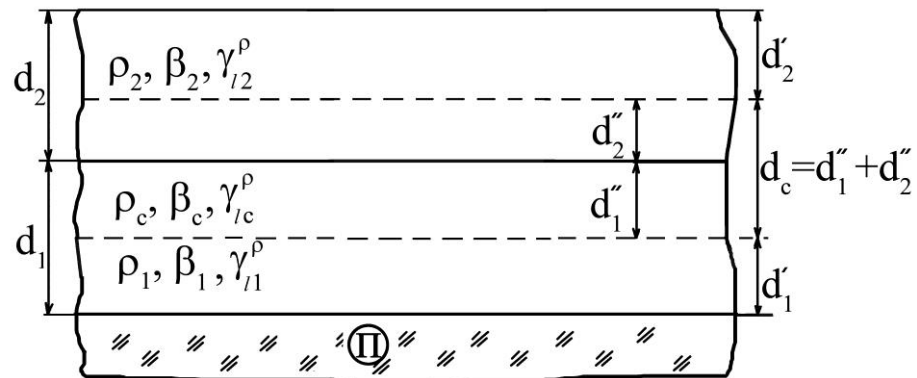


Рис.3.3. Геометрична модель двошарової плівкової системи із проміжним шаром т.р. біля інтерфейсу

Співвідношення (3.8) – (3.10) дозволяють якісно аналізувати тензоефект у гранульованих плівках.

3.2. Особливості процесів розсіювання електронів у плівкових системах в умовах дії фізичних полів

У цьому підрозділі представлена узагальнена напівфеноменологічна модель для фізичних властивості плівкових матеріалів, в якій враховується залежність від зовнішніх фізичних полів таких параметрів електроперенесення як середня довжина вільного пробігу (λ_0), коефіцієнт дзеркальності (ρ), проходження межі зерен (τ) та інтерфейсів (Q_{ij}). Відмітимо, що частинні випадки цієї моделі стосовно ТКО і КТ були розглянуті раніше [36, 37]. Суть нашого узагальнення полягає в тому, що ми вводимо узагальнюючий параметр (позначимо його B), який відповідає температурі T (при аналізі ТКО), деформації ε_l (при аналізі тензоефекту) або магнітному полю H (у випадку магнітоопору). Кількісною характеристикою залежності вказаних параметрів електроперенесення від зовнішніх параметрів можуть бути такі температурні, деформаційні або магнітні коефіцієнти:

$$\beta_B^K = \frac{d \ln R}{dB}, \quad \beta_{0i}^K = -\frac{d \ln \lambda_{0i}}{dB}, \quad \beta_{pi}^K = -\frac{d \ln p_i}{dB}, \quad \beta_{ri}^K = -\frac{d \ln r_i}{dB} \quad \text{та} \quad \beta_{Qij} = -\frac{d \ln Q_{ij}}{dB}, \quad (3.11)$$

де індекс K відповідає поздовжній або поперечній деформації (при аналізі КТ) або трьом орієнтаціям зовнішнього магнітного поля відносно електричного струму: паралельній, поперечній і перпендикулярній.

У випадку тришарової плівкової системи електричний опір виражається співвідношенням:

$$\frac{1}{R} = \frac{a}{l} (d_1 \sigma_{01} F_1 + d_2 \sigma_{02} F_2 + d_3 \sigma_{03} F_3), \quad (3.12)$$

де a, l – ширина і довжина плівкової системи; σ_{0i} і σ_i – питома провідність масивного і плівкового матеріалу; $F_i \equiv \frac{\sigma_i}{\sigma_{0i}}$ – функція Фукса (σ_i – питома провідність плівки).

Після диференціювання попереднього рівняння отримуємо самого загального вигляду співвідношення для польових коефіцієнтів:

$$\beta_B^K \equiv \frac{d \ln R^K}{dB} = A_1 \left(-\alpha_{B1}^K - \frac{\partial \ln \sigma_{01}^K}{\partial B} - \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial B} \right) + \dots + A_3 \left(-\alpha_{B3}^K - \frac{\partial \ln \sigma_{03}^K}{\partial B} - \frac{\partial \ln F_3^K}{\partial B} \right), \quad (3.13)$$

де $A_i = \frac{d_i \sigma_{0i} F_i}{d_1 \sigma_{01} F_1 + d_2 \sigma_{02} F_2 + d_3 \sigma_{03} F_3}$; $\alpha_{Bi}^K = \frac{d \ln d_i}{dB} \cong 0$ – магнітострикційний коефіцієнт; $-\frac{\partial \ln \sigma_{0i}^K}{\partial B} = \beta_{0Bi}^K$, де індекс «0» означає масивний зразок.

Похідну функції Фукса по зовнішньому параметру в розгорнутому вигляді можна записати так:

$$\begin{aligned}
\frac{d \ln F_1^K}{dB} &= \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{d \ln k_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{d \ln m_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_i}{\partial \ln p_i} \frac{d \ln p_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln k_2} \frac{d \ln k_2}{dB} \\
&+ \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_i}{\partial \ln r_i} \frac{d \ln r_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{\partial \ln m_i}{\partial \ln r_i} \frac{d \ln r_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln m_2} \frac{d \ln m_2}{dB} + \\
&+ \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln m_2} \frac{\partial \ln m_2}{\partial \ln r_2} \frac{d \ln r_2}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln Q_{12}} \frac{d \ln Q_{12}}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln k_2} \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln Q_{12}} \frac{d \ln Q_{12}}{dB},
\end{aligned} \tag{3.14}$$

де $k_i = \frac{d_i}{\lambda_{0i}}$ і $m_i = \frac{L_i}{\lambda_{0i}}$ - зведені товщина i -го шару і зведений середній розмір кристалітів (L_i).

Після урахування співвідношень:

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \ln F_i^K}{\partial \ln m_i} &\cong \frac{\partial \ln F_i^K}{\partial \ln k_i} \cong 1 - \frac{\beta_{Bi}^K}{\beta_{0Bi}^K}, & \frac{\partial \ln m_i}{\partial \ln m_k} &\cong \frac{\partial \ln k_i}{\partial \ln k_k} = \frac{\beta_{0Bi}^K}{\beta_{0Bk}^K}, \\
\frac{d \ln m_i}{dB} &= \frac{d \ln k_i}{dB} = \alpha_{Bi}^K + \beta_{0Bi}^K \cong \beta_{0Bi}^K
\end{aligned}$$

рівняння (3.14) приймає такий вигляд:

$$\begin{aligned}
\beta_B^K &= A_1 \left\{ \beta_{0B1}^K - \left(1 - \frac{\beta_{B1}^K}{\beta_{0B1}^K} \right) \left[2\beta_{0B1}^K + \beta_{p1}^K \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln p_1} + \beta_{r1}^K \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln r_1} + \beta_{Q12}^K \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln Q_{12}} \right] + \right. \\
&+ \left. \left(2\beta_{0B2}^K + \beta_{p2}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln p_2} + \beta_{r2}^K \cdot \frac{\partial \ln m_2}{\partial \ln r_2} + \beta_{Q21}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln Q_{21}} \right) \cdot \frac{\beta_{0B1}^K}{\beta_{0B2}^K} \right\} + \dots + \\
&A_3 \left\{ \beta_{0B1}^K - \left(1 - \frac{\beta_{B3}^K}{\beta_{0B3}^K} \right) \left[2\beta_{0B3}^K + \beta_{p3}^K \frac{\partial \ln k_3}{\partial \ln p_3} + \beta_{r3}^K \frac{\partial \ln m_3}{\partial \ln r_3} + \beta_{Q32}^K \frac{\partial \ln k_3}{\partial \ln Q_{32}} \right] + \right. \\
&+ \left. \left(2\beta_{0B2}^K + \beta_{p2}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln p_2} + \beta_{r2}^K \cdot \frac{\partial \ln m_2}{\partial \ln r_2} + \beta_{Q23}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln Q_{23}} \right) \cdot \frac{\beta_{0B3}^K}{\beta_{0B2}^K} \right\},
\end{aligned} \tag{3.15}$$

де коефіцієнти β_B та похідні $\frac{d \ln k}{d \ln p}$, $\frac{d \ln m}{d \ln r}$ і $\frac{d \ln k}{d \ln Q}$ виражають через експериментально визначені величини:

$$\beta_p^K = -\frac{1}{p(B_1)} \frac{p(B_2) - p(B_1)}{(B_2 - B_1)}, \quad \beta_r^K = -\frac{1}{r(B_1)} \frac{r(B_2) - r(B_1)}{(B_2 - B_1)},$$

$$\frac{\Delta \ln k}{\Delta \ln p} = -\frac{p(B_1)}{p(B_2) - p(B_1)} \frac{d / \lambda_0(B_2) - d / \lambda_0(B_1)}{d / \lambda_0(B_1)},$$

$$\frac{\Delta \ln m}{\Delta \ln r} = -\frac{r(B_1)}{r(B_2) - r(B_1)} \frac{L / \lambda_0(B_2) - L / \lambda_0(B_1)}{L / \lambda_0(B_1)}.$$

Завершуючи розгляд напівфеноменологічної моделі, відмітимо, що, в принципі, вона правильно описує електронні процеси розсіювання на зовнішніх поверхнях плівкових зразків, на межах зерен і інтерфейсах, про що свідчать результати апробації частинних випадків моделі [36, 37]. У той же час необхідно констатувати, що запропонована узагальнююча модель ніяким чином не враховує процесів розсіювання електронів на поверхні гранул і на їх магнітних моментах та магнітних моментах можливих доменів твердих розчинів. Ураховуючи попередній висновок про незначну роль розсіювання електронів на гранулах в тензоефекті, можна сподіватись на якісну відповідність запропонованої моделі експериментальній ситуації.

3.3 Прикладні аспекти експериментальних досліджень

Оскільки плівки Ag і Au при товщинах до 30 нм конденсуються як острівцеві, то нами були проведені додаткові їх дослідження прикладного характеру, а саме, спектри випромінювання світла окремими наночастинками Au, індукованого за допомогою скануючого тунельного мікроскопа (СТМ). Двовимірні ансамблі тунельно-зв'язаних часток Au отримували шляхом термічного випаровування на пластину оксиду кремнію в умовах надвисокого вакууму. СТМ вимірювання фіксують один пік при енергії фотонів 1,6 еВ в

режимі тунелювання і наявність двох піків при 2,2 еВ та 1,45 еВ (новий пік, який не обговорювалося в літературі раніше) в режимі польовий емісії (Рис.3.4). Оптичне випромінювання виникає через непружне тунелювання деяких електронів між зондом і зразком при напрузі у декілька вольт обох полярностей або електронного бомбардування зразка при польовій емісії електронів. Це випромінювання світла характеризується спектром, який обумовлений, головним чином, міжзонними переходами, в тому числі і через поверхневі стани, і розпаду плазмонів. У той же час плазмова частота визначається типом матеріалу наночастинок, їх розміром і формою, відстанню між ними та ін.

Спектри випромінювання світла нанорозмірними об'єктами дуже інформативні. Особливістю цього методу є те, що він дає результати, не усереднені по великому числу частинок з різними розмірами, а інформацію про окрему частинку.

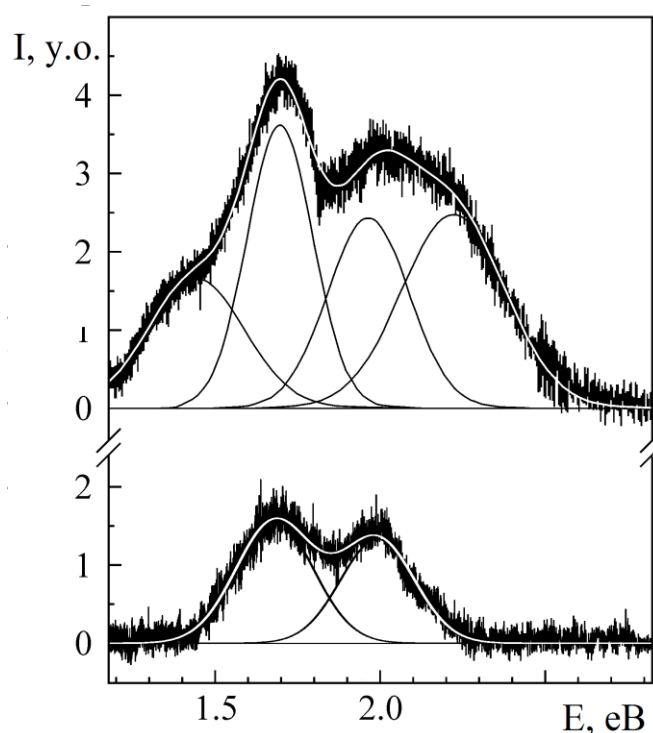


Рис.3.4. Спектр емісії фотонів наночастинок Au (напруга - 10 В, сила наноструму 10 нА)

Таблиця 3.2.

**Робочі параметри чутливого елемента плівкового сенсора
магнітного поля**

Плівка у вихідному стані	Товщина шарів, нм	МО, %			S_B , %/Тл	Області застосування
		орієнтація вектора магн. поля відносно струму				
		поздов.	попер.	перп.		
Fe/Cu/Fe	$d_{Fe} = 10 - 20$; $d_{Cu} = 5 - 20$	0,12	0,15	0,05	1,4 – 2,5	Первинні перетворювачі датчиків магнітного поля
Fe/Pt/Fe	$d_{Fe} = 10 - 30$; $d_{Pt} = 5 - 25$	0,06	0,07	0,04	0,5 – 1,2	Системи для надщільного запису інформації
Fe/Pd/Fe	$d_{Fe} = 5 - 10$; $d_{Pd} = 5 - 10$	0,12	0,10	0,05	0,8 – 1,0	Системи для надщільного запису інформації
Co/Cu/Co	$d_{Co} = 5 - 20$; $d_{Cu} = 5 - 20$	0,25	0,30	0,25	4,0 – 7,0	Чутливі елементи мікросхем для фіксування зміни магнітного потоку та АМР-датчиків

Таблиця 3.3

**Величина АМО в чутливому елементі датчика магнітного поля
при кімнатній температурі**

Плівкова система у вихідному стані	Загальна концентрація атомів магнітної компоненти, ат.%	АМО, %
Co(45)/Cu(25)/Co(20)/П	74	2,3
Fe(30)/Cu(15)/Fe(30)/П	82	1,6
Fe(20)/Cu(10)/Fe(25)/П	79	3,5

Наведені результати дозволяють говорити про їх прикладних характер, оскільки запропонована методика реєстрування спектру оптичного випромінювання дозволяє використовувати малі частинки Au (а можливо і Ag) як чутливий елемент сенсора плазмових коливань.

Як прикладний аспект проведених досліджень можна розглядати і наш патент на корисну модель сенсора магнітного поля, чутливий елемент якого формується методом пошарової конденсації магнітних і немагнітних металевих шарів з подальшою термообробкою в інтервалі температур 300 – 1000 К. Корисна модель відноситься до сенсорної техніки, зокрема, до матеріалів чутливих елементів сенсорів магнітного поля, призначених для вимірювання магнітних характеристик, визначення кута повороту і положення об'єкта, вимірювання частоти обертання, деформації зразків. В основу корисної моделі поставлена задача удосконалення чутливого елемента сенсора магнітного поля шляхом його формування з тонкої металевої тришарової плівки у вигляді феромагнітний метал (ФМ) / немагнітний метал (НМ) / феромагнітний метал (ФМ) товщиною окремих шарів від 5 до 30 нм, що дозволяє проводити вимірювання магнітоопору широкому температурному інтервалі 300 – 1000 К і слабких магнітних полях 0 – 1 Тл.

У багатошарових плівках, які можна використовувати як чутливий елемент сенсора магнітного поля, реалізується гранульований стан і, як наслідок, спін-залежне розсіювання електронів, що обумовлює незалежність опору чутливого елемента від орієнтації зовнішнього магнітного поля, та його висока термічна стабільність. Тришарова плівка формується із магнітних (Fe або Co) і немагнітних (Cu, Pd, Pt або Ag) шарів металів, які поперемінно чергуються і мають товщину від 5 до 30 нм. Робочі характеристики чутливих елементів у вигляді плівки із елементами гранульованого стану представлені у таблицях 3.2 і 3.3.

Відмітимо, що у всіх наведених у таблицях 3.2 і 3.3 плівкових системах стабілізується гранульований стан по усій товщині чутливого елемента. Крім того, вкажемо, що раніше нами був запропонований подібний чутливий елемент тензодатчика.

ВИСНОВКИ

1. На основі аналізу експериментальних результатів та літературних даних здійснено термінологічне уточнення стосовно позначення фазового складу плівкових систем у вихідному і кінцевому стані, в яких формуються гранульовані сплави; таке уточнення сприятиме кращому розумінню фазового складу сплавів та фізичних процесів в них.

2. Вперше проведені дослідження розмірної, температурної та концентраційної залежностей ТКО гранульованих плівкових сплавів на основі Fe і Ag або Au дозволили установити наступне:

- у плівкових системах на основі Fe і Ag або Au, отриманих пошаровою або одночасною конденсацією, величина ТКО практично не залежить від температури (інтервал 300 – 800 K) та ефективної концентрації магнітної компоненти (інтервал концентрацій 20 – 80 ат.%) і лежить у межах $(0,5 - 2,0) \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$; у той же час, при збільшенні загальної товщини зразків (інтервал 15 – 60 нм) фіксується незначне збільшення величини ТКО, але ще в меншій мірі спостерігається ступінь зменшення ТКО при збільшенні температури;
- у всіх плівкових зразках величина ТКО в залежності від ефективної концентрації магнітної компоненти зростає за параболічним законом, наближаючись до величини ТКО для плівки Co такої ж товщини, як і гранульованого плівкового сплаву;
- питомий опір гранульованих плівкових сплавів у значній мірі залежить від товщини зразків і змінюється у межах $10^{-6} - 10^{-7} \text{ Ом} \cdot \text{м}$.

3. Розмірні, температурні та концентраційні залежності ТКО гранульованих плівкових сплавів на основі Co і Ag або Au мають такий же характер і близькі числові значення, як і у випадку плівкових систем на основі Fe і Ag або Au.

4. У процесі дослідження тензорезистивних властивостей було встановлено:

- середнє значення $(\gamma)_{\text{dif}}$ для плівок на основі Ag та Co змінюється в інтервалі від 1,40 до 3,67 од. в інтервалі деформацій $\Delta \varepsilon_l = (0 \div 1)\%$, та від 1,49 до 4,92 при

$\Delta\varepsilon_l = (0\div 2) \%$ в залежності від концентрації магнітної компоненти в плівковому зразку. При товщині більше 50 нм і ε_l близько до 0,4 % спостерігається перехід від пружної до пластичної деформації, про що свідчить мінімум КТ на розмірній залежності $(\gamma)_{\text{dif}}$ від загальної товщини;

– значення $(\gamma_l)_{\text{dif}}$ для гранульованих плівок більші, ніж в одношарових зразках Ag або Au;

– деформація переходу від пружної до квазіпружної деформації у всіх досліджуваних зразках із елементами гранульованого стану складає 0,3–0,4 % і збільшується для систем, в яких утворилися т. р. та гранульований сплав.

5. У гранульованих плівкових сплавах на основі Fe і Au вперше спостерігався концентраційний аномальний тензоефект, суть якого полягає у значному збільшенні (від 2 до 80 одиниць) величини КТ в області пластичної деформації $\varepsilon_l > 1\%$ при концентрації магнітної компоненти $c = 55 - 75 \text{ ат.}\%$ Fe; дослідження фазового складу вказують на реалізацію в цьому інтервалі концентрацій фазового переходу: гранульований ГЦК т.р. Au(Fe) \rightarrow ОЦК т.р. α -Fe(Au) із диспергуванням зерен у плівках.

6. Запропонована узагальнена напівфеноменологічна модель тензоефекту, яка дозволяє урахувати можливі електронні процеси розсіювання та їх залежність від зовнішніх фізичних полів (температури, деформації та магнітного поля).

7. Прикладні додаткові дослідження дозволили запропонувати наночастинки благородних металів як чутливий елемент сенсора плазмових коливань, а тришарову плівку на основі Fe або Co та благородних металів як чутливий елемент сенсора магнітного поля.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Berkowitz A.E., Mitchell J.R., Carey M.J., Young A.P., Zhang S., Spada F.E., Parker F. T., Hutten A., Thomas G.: Giant magnetoresistance in heterogeneous Cu-Co alloys. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3745-3748 (1992).
2. Fert, A., Duvail, J., Valet, T.: Spin relaxation effects in the perpendicular magnetoresistance of magnetic multilayers. *Phys. Rev. B* **52**, 6513-6521 (1995).
3. Guslienko K.Yu.: Phenomenological theory of the giant magnetoresistance of ferromagnet-nonmagnetic metal granular media. *Phys. Solid State* **40** (10), 1697-1701 (1998).
4. Granovskii A. B., Vedyayev A. V., Kalitsov A. V.: Anisotropy of giant magnetoresistance in magnetic multilayers and granular films. *Fizika Tverdogo Tela* **37**, 337-343 (1995).
5. Granovsky A. B., Il'in M., Zhukov A., Zhukova V., Gonzales Kh.: Giant magnetoresistance of granular microwires: Spin-dependent scattering in intergranular spacers. *Phys. Solid State* **53** (2), 320-322 (2011).
6. Protsenko S.I., Odnodvoretz L.V., Cheshko I.V.: Fenomenological model of electrophysical properties of granular film alloys. *Visnyk SumDU. Seria: Fyzyka, matematyka, mekhanika*, **1**, 22-27 (2008).
7. Odnodvoretz L.V., Shumakova M.O., Protsenko I.Yu., Shabelnyk Yu.M., Shumakova N.I. Phenomenological Theory of Strain Effect in Granular Film Alloys / *Proceedings of the International Conference «Nanomaterials: Applications and Properties»*, 3, 1, 01NTF09 (2014).
8. Rizal C., Ueda Y., Karki B.R.: Magnetic properties of Fe/Cu multilayers prepared using pulsed-current electrodeposition. *J. Nano- Electron. Phys.* 4, 01001-1 - 01001-3 (2012).
9. Odnodvoretz L. Influence of magnetic field on thermal coefficient of resistance of the granular film alloys // *Proceedings of the International Conference «Nanomaterials: Applications and Properties»*, **3**, 1, 02NNF13-4 (2014).

10. Kondrakhova D.M., Shabelnyk Yu.M. Synashenko O.V., Protsenko I.Yu.: Strukturno-fazovyi stan, elektrofizychni ta magnetorezystyvni vlastyvosti tverdykh rozchyniv u plivkovykh systemakh na osnovi Co i Cu abo Ag ta Fe i Cr abo Cu. *Usp. Fiz. Met.* **13**, 241–267 (2012).
11. Grunberg P., Barnas J., Saurenbach F., Fub J.A., Wolf A., Vohl M.: Layered magnetic structures: antiferromagnetic type interlayer coupling and magnetoresistance due to anparallel alignment. *J. Mag. Magn. Mater.* **93**, 58-66 (1993).
12. Rizal C., Niraula B.B.: Ferromagnetic Alloys: Magnetoresistance, Microstructure, Magnetism, and Beyond (Review). *J. Nano- Electron. Phys.* **7** (4), 04068 (2015).
13. Peng X., Morrone A., Nikolaev K., Kief M., Ostrowski M.: Effect of material selection and background impurity on interface property and resulted CIP-GMR performance. *J. Mag. Magn. Mater.* **321**, 2902-2910 (2009).
14. Wang J.-Q., Xiao G.: Transition-metal granular solids: Microstructure, magnetic properties, and giant magnetoresistance. *Phys. Rev. B* **49**, 3982-3996 (1994).
15. Bakonyi I., Peter L. Electrodeposited multilayer films with giant magnetoresistance (GMR): Progress and problems. *Prog. Mater. Sci.* **55**, 107 (2010).
16. Nepijko S.A., Kutnyakhov D., Protsenko S.I., Odnodvoret L.V., Schönhense G.: Sensor and microelectronic elements based on nanoscale granular systems. *J. Nanopart Res* **13**, 6263-6281 (2011).
17. Peng D.L., Wang J., Wang L. Liu X., Wang Z., Chen Y. Electron transport properties of magnetic granular films. *Sci China-Phys Mech Astron.* **56**, 15-28 (2013).
18. Ju Y., Xu C., Li Z.Y.: Temperature dependence of giant magnetoresistance in CoAg granular composite. *J. Magn. Magn. Mater.* **223**, 267-272 (2001).
19. Hite D. A., Russek S. E., Pappas D. P.: In situ conductance characterization of Fe/Ag multilayer contacts on GaAs. *J. Appl. Phys.* **94**, 621-625 (2003).
20. Alonso J., Fdez-Gubieda M. L., Sarmiento G., Barandiarán J. M., Svalov A., Orue I., Chaboy J., Fernández Barquín L., Meneghini C., Neisius T., Kawamura N.: Influence of the interface on the electronic channel switching of a Fe–Ag thin film on a Si substrate *Appl. Phys. Lett.* **95**, 082103 (2009).

21. Csontos M., Balogh J., Kaptás D., Kiss L. F., Kovács A., Mihály G.: Magnetic and transport properties of Fe-Ag granular multilayers. *Phys. Rev. B* **73**, 184412 (2006).
22. Zong R.L., Wen S.P., Zeng F., Gao Y., Song C., He B., Pan F.: fcc solid solution alloy films formed in immiscible Fe–Ag system and their mechanical behaviors. *Appl. Surf. Sci.* **253**, 2993-2998 (2007).
23. Li X. Y., Kong L. T., Liu B. X.: Enhanced magnetic moment of Fe in fcc-structured Fe-Ag and Fe-Au alloys synthesized by ion-beam manipulation. *Phys. Rev. B* **72**, 054118 (2005).
24. Srivastava A.K., Amirthapandian S., Panigrahi B.K., Gupta Ajay, Nandedkar R.V.: Microstructural investigations on ion beam mixed Fe/Ag multilayer. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* **244**, 359-364 (2006).
25. Aloy C., Stahl B., Ghafari M., Hahn H.: Interface contribution to giant magnetoresistance in granular AgFe studied with Mössbauer spectroscopy. *J. Appl. Phys.* **88**, 4212-4215 (2000).
26. Xiao-ying Z., Xue-jing L., Fei Z., Feng P.: Microstructure and nanoindentation hardness of Ag/Fe multilayers. *Trans. Nonferrous Met. Soc. China* **20**, 110-114 (2010).
27. Sumiyama K., Hihara T., Makhlof S.A., Wakoh K., Sakurai M., Xu Y., Konno T.J., Yamamuro S., Suzuki K.: Structural difference between Fe/Cu and Fe/Ag granular films produced by a cluster beam method. *Mater. Sci. Eng., A.* **217-218**, 340-343 (1996).
28. Hohl G.-F., Hihara T., Sakurai M., Konno T. J., Sumiyama K., Hensel F., Suzuki K.: Superparamagnetic Fe clusters in Ag matrix produced by sputter-gas aggregation *Appl. Phys. Lett.* **66**, 385-387 (1995).
29. Hyun Y. H., lee Y.P., Kudryavtsev Y. V., Gontarz R.: Properties of Au-Fe disordered alloy films near the fcc-bcc structural transformation. *J. Korean Phys.Soc.* **43**, 625-628 (2003).
30. Bosco E., Rizzi P., Baricco M.: Phase transformations in Au–Fe melt spun alloys. *Mater. Sci. Eng., A* **375–377**, 468-472 (2004).

31. Mukherjee P., Zhou Lin, Kramer M. J., Shield J. E.: Formation of non-equilibrium Fe-Au solid solutions in nanoclusters. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 243103 (2013).
32. Takanashi K., Mitani S., Sano M., Fujimori H., Nakajima H., Osawa A.: Artificial fabrication of an L10-type ordered FeAu alloy by alternate monatomic deposition. *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1016-1018 (1995).
33. Mukherjee P., Zhang Y., Kramer M. J., Lewis L. H., Shield J. E.: L1₀ structure formation in slow-cooled Fe-Au nanoclusters. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 211911 (2012).
34. Cheshko I.V., Pazukha I.M., Protsenko S.I., Shabelnyk M.Yu, Shapko D.V.: Magneto-resistive and magneto-optical properties nanosize film systems based on Fe and Au Proceedings of the International Conference «Nanomaterials: Applications and Properties», **2**, 1, 01NTF40 (2013).
35. Pylypenko O.V., Odnodvoretz L.V., Shumakova M.O., Protsenko I.Yu. The concentration anomaly of strain coefficient binary film system based on Au and Fe atoms // *Problems Atomic Sci. Technol.*, **5**, 131 (2016).
36. Tellier C.R., Tosser A.J. Size effects in thin films. Elsevier, Amsterdam – Oxford – New York (1982) .
37. Lasyuchenko O., Odnodvoretz L., Protsenko I. Microscopic theory of the sensitivity of multi-layer polycrystalline films // *Cryst. Res. Technol.*, **35**, 3, 329 (2000).