УДК 669:66.095.8, 621.9.048.7:533.9 УКПП № держреєстрації 0121U112687 Інв. №

Міністерство освіти і науки України

Сумський державний університет (СумДУ) 40007, м. Суми, вул. Римського-Корсакова, 2; тел. (0542) 33 41 08

ЗАТВЕРДЖУЮ

Проректор з наукової роботи, д-р фіз.-мат. наук, проф.

_____ А.М. Чорноус

НАУКОВО-ТЕХНІЧНИЙ ЗВІТ

Виконання завдань перспективного плану розвитку наукового напряму «Математичні науки та природничі науки» Сумського державного університету

(проміжний)

ВСТАНОВЛЕННЯ ЗАКОНОМІРНОСТЕЙ ВЗАЄМОЗВ'ЯЗКУ МІЖ СТРУКТУРНИМ І МАГНІТНИМ СТАНАМИ ТА ЕЛЕКТРОФІЗИЧНИМИ І МАГНІТНИМИ ВЛАСТИВОСТЯМИ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ (СЕРЕДНЬО- І ВИСОКОЕНТРОПІЙНИХ) ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ ТА РОЗРОБКА МЕТОДИКИ ФОРМУВАННЯ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ ПЛІВКОВИХ НАНОМАТЕРІАЛІВ

Керівник НДР д-р фіз.-мат. наук, проф.

_____І.Ю. Проценко

2022

Рукопис закінчено 21 грудня 2022 р.

Результати роботи розглянуто науковою радою СумДУ, протокол від 22 грудня 2022 р. № 7

СПИСОК АВТОРІВ

Керівник НДР, головний науковий співробітник, д-р фізмат. наук, професор	21.12.2022 p.	І.Ю. Проценко (вступ, підрозділ 2.3,
Відповідальний виконавець, провідний науковий співробітник, л-р фізмат. наук. професор		висновки) Л.В. Олнолворець
	21.12.2022 p.	(підрозділ 2.2, перелік джерел посилання)
д-р фізмат. наук, професор	21.12.2022 p.	С.І. Денисов (підрозділ 4.3)
Провідний науковий співробітник, д-р фізмат. наук, професор	21.12.2022 p.	I.О. Шпетний (підрозділ 1.2)
Провідний науковий співробітник, д-р фізмат. наук, професор	21.12.2022 p.	О.В. Лисенко (підрозділ 4.1)
Старший науковий співробітник, канд. фізмат. наук, доцент	21.12.2022 p.	Ю.М. Шабельник (підрозділ 3.2)
Старший науковий співробітник, канд. фізмат. наук, доцент	21.12.2022 p.	К.В. Тищенко (підрозділ 3.1)
Старший науковий співробітник, канд. фізмат. наук, доцент	21.12.2022 p.	Н.І. Шумакова (підрозділ 1.3
Старший науковий співробітник, канд. фізмат. наук, доцент	21.12.2022 p.	О.В. Пилипенко (підрозділ 2.1)
Старший науковий співробітник, канд. фізмат. наук, доцент	21 12 2022 n	Т.В. Лютий (підроздід 4 2)
Старший науковий співробітник, канд. фізмат. наук, доцент	21.12.2022 p.	О.О. Пасько (підрозділ 2.1)
Інженер	21.12.2022 p.	А.О. Степаненко (підрозділ 1.1)

РЕФЕРАТ

Звіт про НДР: 57 с., 3 табл., 15 рис., 58 джерел.

ВИСОКОЕНТРОПІЙНІ ПЛІВКОВІ СПЛАВИ, КОЕФІЦІЄНТ ТЕНЗОЧУТЛИВОСТІ, КОНЦЕНТРАЦІЙНІ ЗАЛЕЖНОСТІ, ПРАВИЛО АДИТИВНОСТІ, СЕРЕДНЯ ДОВЖИНА ВІЛЬНОГО ПРОБІГУ ЕЛЕКТРОНІВ, ТЕМПЕРАТУРА ДЕБАЯ, ТЕМПЕРАТУРНИЙ КОЕФІЦІЄНТ ОПОРУ

Розроблена методика формування високоентропійних плівкових сплавів (ВЕС) шляхом пошарової або одночасної конденсації окремих компонент, яка більш енергоефективна і фінансово менш затратна порівняно з методами іонного та магнетронного розпилення, які використовуються при формуванні масивних ВЕС.

На феноменологічному рівні проведений теоретичний аналіз концентраційної залежності термічного коефіцієнта опору (ТКО), коефіцієнта тензочутливості (КТ), середньої довжини вільного пробігу (СДВП) та температури Кюрі для плівкових високоентропійних твердих розчинів на основі Fe, Ni, Co, Cu, Cr. Показано, що температура Кюрі плівкових ВЕС порівняно з масивними ВЕС може зменшуватися або збільшуватися на 350-400 K, що пояснюється реалізацією доменної структури в магнітних гранулах на основі атомів Cu. Показано, що зміна параметрів решітки відбувається у відповідності з правилом Вегарда. Результати розрахунків електрофізичних властивостей добре відповідають експериментальним результатам.

Установлено, що чутливі елементи сенсорної електроніки на основі багатокомпонентних плівкових сплавів мають переваги перед іншими нанорозмірними матеріалами, які пов'язані із їх фазовою та температурною стабільністю у широкому робочому діапазоні.

Побудована асимптотична теорія спрямованого транспорту феромагнітних наночастинок у в'язкій рідині. Теорія базується на асимптотичних розкладах координати частинки і її середньої швидкості на малих і великих часових інтервалах з використанням узгодженого асимптотичного аналізу.

3MICT

Вступ:	концепція адитивності для електрофізичних та магнітор	езистивних
властис	свостей багатокомпонентних пілвкових матеріалів	6
1. Метс	одика формування високоентропійних плівкових сплавів (ВЕС	С) та
вимірю	вання електрофізичних і магніторезистивних властивостей	
1.1 Кри	сталічна структура	18
1.2.	Карти розподілу елементів	
1.3	Електрофізичні і магніторезистивні вимірювання	22
2. Ко	нцентраційні залежності електрофізичних величин у	наближенні
еквіато	много складу фазоутворючої комбінації елементів	26
2.1	Питомий опір та ТКО	27
2.2.	Тензочутливість	
2.2.	1 Базові співвідношення	27
2.2.	2 Розрахункові залежності	30
2.3	Електронні властивості пілвкових ВЕС	
3. Конц	сентраційні залежності динамічних та термодинамічних велич	ин36
3.1	Температура плавлення	
3.2	Температура Дебая і параметр решітки	37
4. C	прямований транспорт феромагнітних наночастинок у в'язкій	рідині41
4.1	Однодоменні наночастинки	41
4.2	Динаміка наночастинок у градієнтномк магнітному полі	41
4.3	Елементи асимптотичної теорії спрямованого транспорту наноч	астинок45
Виснов	ки	52
Перелін	к джерел посилання	55

ВСТУП: КОНЦЕПЦІЯ АДИТИВНОСТІ ДЛЯ ЕЛЕКТРОФІЗИЧНИХ І МАГНІТОРЕЗИСТИВНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ ПЛІВКОВИХ МАТЕРІАЛІВ

Високоентропійні плівкові сплави (ВЕС) – це перспективний клас багатокомпонентних функціональних матеріалів [1-3]. ВЕС містять не менш 5 основних металевих елементів, атомний відсоток кожного з яких складає від 5 до 35%. В отриманих з'єднаннях відбувається формування однофазного стабільного твердого розчину заміщення (переважно ГЦК- або ОЦК-гратки), який є одночасно високоміцним і термодинамічно стійким [4]. Причина цього – висока ентропія змішування, що забезпечує стабілізацію утворення твердого розчину й запобігає формування інтерметалідних фаз у процесі кристалізації [5].

У випадку ВЕС формування твердого розчину відбувається за рахунок мінімуму вільної енергії системи. Конфігураційна ентропія системи з ростом кількості складових елементів збільшується. Викривлення кристалічних граток у ВЕС відбувається за рахунок змішування атомів різних радіусів. На відміну від традиційних сплавів, де можна чітко розділити розчинники, і розчинені атоми, у випадку ВЕС атоми складових елементів мають однакову ймовірність зайняти той або інший вузол у кристалічній решітці сформованого неупорядкованого розчину.

Різнорідність атомів приводить до зміни потенціальної енергії між вузлами кристалічних граток, а її флуктуації потенціальної енергії знижують дифузію елементів у матриці. Таким чином, у ВЕС спостерігається мінімальний коефіцієнт дифузії, що впливає на безліч факторів: ріст зерен відбувається повільніше; збільшується міцність при термічній обробці; більша ймовірність формування наноструктур [1-8].

Велика увага приділяється дослідженням механічних та трибологічних властивостей ВЕС у вигляді покриттів мікронної товщини [9-13], які фактично мають відношення тільки до масивних зразків. Починаючи з 2010-х років почались інтенсивні дослідження електрофізичних, магнітних і магніторезистивних властивостей ВЕС, як масивних зразків і покриттів, так і тонких плівок (див., наприклад, [14-23]).

У цьому відношенні до великої міри програмною роботою виступає [15], оскільки у ній, можливо вперше, на прикладі ВЕС (Co-Cr-Fe-Ni)_{1-x}-Al_x (у позначенні авторів [15] – Al_xCoCrFeNi), де x = 0 - 2 ат.%, вперше були вивчені експериментально і розрахунковим методом електрофізичні, магнітні, магніторезистивні властивості та ефект Холла.

Були досліджені три типи зразків: після конденсації, гомогенізації та деформації. У всіх трьох випадках температурна залежність питомого опору має типовий характер для металевих магнітних матеріалів: $\rho = \rho_r + \text{AlnT} + \text{BT}^2 - \text{CT}^3$ (інтервал 4,2 – 66 K) або $\rho = \rho_r + \text{BT}^2 + \text{DT}$ (інтервал 100-300 K), де $\rho_r - 3$ алишковий питомий опір, а доданки пропорційні lnT, T², T³ і T відповідають за кондовський механізм розсіювання електронів, за електрон-магнонну та низько-або високотемпературну електрон-фононну взаємодію відповідно. Питомий опір і відповідний термічний коефіцієнт опору змінюється у межах (100-280)·10⁻⁸ Оhm·m або від 3·10⁻⁴ до 4·10⁻³ K⁻¹ відповідно, що добре узгоджується із даними для металевих матеріалів.

Роботи [16-18] присвячені впливу концентрації атомів немагнітних компонент на магнітні властивості ВЕС (Co-Cr-Fe-Ni-W) [3], (Fe-Co-Ni-Cr)_{1-x}Cu_x [4] та (Co-Fe-Ni)_{1-x-y}-Cr_y-Cu_x [18]. У цих роботах наведені дані про намагніченість, магнітні моменти, стабілізацію парамагнітних і магнітних фаз. З нашої точки зору дуже важливий результат отримали автори [17]. Вони зробили карти розподілу елементів, на яких фіксуються області локалізації окремих елементів (іншими словами - гранули). Це спостереження до великої міри внесе ясність стосовно стабілізації гранул, існування яких розглядається як гіпотеза, а не факт.

У 2016 році на кафедрі прикладної фізики Сумського державного університету були започатковані дослідження фазового складу, електрофізичних і магніторезистивних властивостей багатокомпонентних плівкових ВЕС товщиною до 100 нм. Ми у своїх роботах [19, 20, 22] описали спостереження у плівкових ВЕС у вигляді багатошарової плівки Co(20)/Ni(14)/Cu(20)/Fe(30)/Al(15)/П (П-підкладка) гігантського магнітоопору (ГМО) із амплітудою до 0,30%. Реалізацію цього ефекту ми повязували із спінзалежним розсіюванням електронів провідності на частинках AlNi [19].

У роботах [20, 21] була спроба проаналізувати питання електрофізичних і магніторезистивних властивостей багатокомпонентних плівок. Авторами науково-технічної роботи цей аналіз був розширений під кутом зору відповідності поставленим завданням. При вивченні електрофізичних властивостей основна увага була приділена ТКО. Прогнозувати концентрацію гранул і їх розмірів можна виходячи із співвідношення для загальної концентрації атомів феромагнітної компоненти у плівковій системі (c_{3ae}):

$$c_{_{3a2}} = \Delta c_{_{mp}} + c_{_{3M}}^{^{2p}} + \Delta c_{_2},$$

де $c_{_{3M}}^{_{PP}}$ – гранична концентрація насичення феромагнітної компоненти на межах зерен, $\Delta c_{_{2}}$ – концентрація атомів в гранулах.

У результаті аналіза електрофізичних властивостей багатокомпонентних, у т.ч. і ВЕС, було записано співвідношення адитивності для питомого опору (ρ), що справедливо при відносно низьких концентраціях (до 20 ат.%) окремих компонент [20, 21]:

$$\rho = \sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i, \tag{1.1}$$

де c_i і ρ_i – концентрація та питомий опір і-ї компоненти.

Температурний коефіцієнт опору (β_T) плівки можна представити у вигляді такого співвідношення:

$$\beta_T = \frac{\partial \ln \rho}{\partial T} = \frac{1}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i} \cdot \frac{\partial \sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i}{\partial T} = \frac{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i \cdot \beta_i}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i},$$
(1.2)

де β_i – ТКО і-го компонента, якщо температурний градієнт концентрації $\frac{\partial c_i}{\partial T} = 0$. У самому загальному випадку, коли $\frac{\partial c_i}{\partial T} \neq 0$, співвідношення (1.2) буде виглядати так:

$$\beta_T = \frac{\sum_{(i)} \left(\frac{\partial c_i}{\partial T} \rho_i + c_i \frac{\partial \rho_i}{\partial T} \right) c_i \cdot \rho_i}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i} = \frac{\sum_{(i)} \left(c_i \cdot \rho_i \cdot \beta_{c_i} + c_i \cdot \rho_i \cdot \beta_i \right)}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i} = \frac{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i \cdot (\beta_{c_i} + \beta_i)}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i}.$$
 (1.2)

Цей феноменологічний підхід може бути використаний для визначення магнітного коефіцієнта питомого опору (*β*_B) МО або ГМО.

У першому випадку можна записати

$$\beta_B = \frac{\partial \ln \rho}{\partial B} = \frac{\sum_{(i)} (\frac{\partial c_i}{\partial B} \cdot \rho_i + \frac{\partial \rho_i}{\partial B} \cdot c_i)}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i} = \frac{\sum_{(i)} (c_i \cdot \rho_i \cdot \beta_{Bc_i} + \cdot \rho_i \cdot \beta_{B_i})}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i} = \frac{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i \cdot (\beta_{Bc_i} + \cdot \beta_{B_i})}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i}.$$
(1.3)

Зауважимо, що у співвідношеннях (1.2') і (1.3) похідні $\partial c_i / \partial T$, $\partial \rho_i / \partial T$ і $\partial \rho_i / \partial B$ ми помножили і поділили на c_i або ρ_i . Це дозволило перейти від похідних до реальних температурних і польових коефіцієнтів β_{Bci} , β_i and β_{Bi} .

Співвідношення (1.3) дещо спрощується, якщо припустити, що градієнт концентрації $\partial c_i / \partial B \cong 0$:

$$\beta_B \cong \frac{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i \cdot \beta_{B_i}}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i}.$$
(1.3')

Крім того, логічно було б припустити, що основний внесок у величину β_{Bi} дають магнітні матеріали, що дозволяє записати (1.3') насутпним чином:

$$\beta_B \cong \frac{\sum_{(j)} c_{mj} \cdot \rho_{mj} \cdot \beta_{mB_j}}{\sum_{(i)} c_i \cdot \rho_i}, \qquad (1.3'')$$

де індекс «т» позначає магнітні складові.

Оскільки співвідношення (1.2') було переписане в апроксимації $\beta_{ci} \cong 0$, то значення β_{Γ} буде порядка $\beta_{T} \cong n \cdot \overline{\beta_{i}} \cdot \overline{c_{i}} \cong 10^{-3}$ K⁻¹, де n – кількість компонент BEC; $\overline{\beta_{i}}$ – середня величина ТКО для n-компонента BEC. При значеннях $\overline{\beta_{i}} \cong$ (6-10)·10⁻⁴ K⁻¹ величина $\beta_{\Gamma} \cong (3-5)·10^{-3}$ K⁻¹, що узгоджується з експериментальними даними $\beta_{\Gamma} \cong 3,2·10^{-3}$ K⁻¹ (товщина 80 нм) і 3,0·10⁻³ K⁻¹ (товщина 74 нм) [20, 21].

Величина нормального магнітоопору $MO = \frac{\rho(B) - \rho(0)}{\rho(0)}$, у випадку багатокомпонентного сплаву було представлено так:

$$MO \cong \frac{\sum_{(i)} (c_i(B)\rho_i(B) - c_i(0)\rho_i(0))}{\sum_{(j)} c_i(0) \cdot \rho_i(0)} \cong \frac{\sum_{(i)} (c_{mi}(B)\rho_{mi}(B))}{\sum_{(i)} c_i(0)\rho_i(0)}.$$
 (1.4)

Магнітний коефіцієнт нормального магнітоопору МО (β_B^{MO}) був записаний у вигляді (1.4):

$$\beta_B^{M0} = \frac{\partial \ln MO}{\partial B} = \frac{1}{MO} \cdot \frac{\partial MO}{\partial B} = \frac{\sum_{(i)} c_i(0) \cdot \rho_i(0)}{\sum_{(i)} (c_i(B)\rho_i(B) - c_i(0)\rho_i(0))} \times$$

$$\times \sum_{(i)} \left[\frac{\partial c_i(B)}{\partial B} \rho_i(B) + c_i(B) \frac{\partial \rho_i(B)}{\partial B} - \frac{\partial c_i(0)}{\partial B} \rho_i(0) - c_i(0) \frac{\partial \rho_i(0)}{\partial B} \right] \cong (1.5)$$

$$\cong \frac{\sum_{(i)} c_i(0) \cdot \rho_i(0)}{\sum_{(i)} (c_i(B) \rho_i(B) - c_i(0) \rho_i(0))} \times \sum_{(i)} (c_i(B) \beta_{Bc_i} \rho_i(B) + c_i(B) \beta_{B_i} \rho_i(B)),$$

де враховано, що $\partial c_i(0)/\partial B \cong 0$ і $\partial \rho_i(0)/\partial B \cong 0$ ($c_i(0)$ і $\rho_i(0)$ – концентрація і питомий опір і-го компонента при B = 0).

Як і у випадку нормального МО другий доданок у співвідношенні (1.5) можна спростити, враховуючи лише внесок магнітних компонентів. Оскільки з

точки зору математичного апарату звичайні МО і ГМО мають однакову структуру, можна записати:

$$\Gamma MO = \frac{\sum_{(i)} (c_i(B)\rho_i(B) - c_i(0)\rho_i(0))}{\sum_{(i)} c_i(0) \cdot \rho_i(0)} \cong \frac{\sum_{(j)} (c_{mj}(B)\rho_{mj}(B) - c_{mj}(0)\rho_{mj}(0))}{\sum_{(i)} c_i(0)\rho_i(0)}.$$
 (1.6)

За аналогією з (1.5) можна записати співвідношення для магнітного коефіцієнта ГМО, засноване на спрощеному співвідношенні (1.6'):

$$\beta_B^{\Gamma MO} = \frac{\partial \ln \Gamma MO}{\partial B} = \frac{\sum_{(i)} c_i(0) \cdot \rho_i(0)}{\sum_{(i)} (c_i(B)\rho_i(B) - c_i(0)\rho_i(0))} \times$$

$$\times \left(\sum_j \left(c_{mj}(B)\beta_{Bc_i}\rho_i(B) + c_i(B)\beta_{B_i}\rho_i(B) - c_{mj}(0)\beta_{mB_j}\rho_{mj}(0) \right) \right),$$
(1.6')

де, як і у випадку (1.5), припускаємо, що $\partial c_i(0)/\partial B \cong 0$ і $\partial \rho_i(0)/\partial B \cong 0$.

На основі наших експериментальних даних можна оцінити величину β за співвідношенням (1.2) на прикладі плівок ВЕС на основі Fe, Co, Ni, Cu та Al в діапазоні товщин 70-80 нм [20, 23]. Оцінка $\beta_{\rm B}{}^{\Gamma M O}$ дає величину біля 10⁻³ T⁻¹, яка якісно відповідає експериментальному значенню $\beta_{\rm B}{}^{\Gamma M O} \cong (4-5){}^{\cdot}10^{-3}$ T⁻¹ [19, 24].

Незважаючи на феноменологічний характер співвідношень (1.3), (1.5) та (1.6'), вони дають змогу прогнозувати термо- та магніторезистивні властивості плівкових ВЕС. Відзначимо також, що різниця між експериментальними значеннями $\beta_{\rm B}^{MO}$ і $\beta_{\rm B}^{\Gamma MO}$ та розрахованими за формулами (1.5) і (1.6') може бути характеристикою ступеня намагніченості високоентропійних плівкових сплавів.

Акцентуємо увагу та тому, що плівкові матеріали – це унікальні об'єкти. В них реалізуються фізичні ефекти, які відсутні або слабо виражені у масивних зразках, а саме розмірні явища в електрофізичних, магніторезистивних властивостях, дифузійних та термодинамічних процесах. Указані явища мають свої особливості у гранульованих плівкових твердих розчинах, які формуються на основі парамагнітних (матеріал матриці) та магнітних (матеріал гранул)

компонент (див., наприклад, [1-6]), оскільки на магнітних моментах (спінах) гранул реалізується спін-залежне розсіювання (СЗРЕ) спін-поляризованих електронів провідності, що спричиняє ефект гігантського магнітного опору.

Для розрахунків величини магнітного коефіцієнта питомого опору β_{mB} ми використовували співвідношення для загальної величини β із феноменологічної моделі, а для знаходження магнітного коефіцієнта твердого розчину без гранул співвідношення із робіт [25, 26].

Методика для розрахунку спіна гранули S, яку у попередніх роботах запропонували автори проєкту (див., наприклад, [32], базується на співвідношенні

$$\rho_m(T,B) = a \left[S - \left(S + \frac{1}{2} \right) \operatorname{coth} \frac{\left(2S + 1 \right) g \mu_B B}{2kT} + \frac{1}{2} \operatorname{coth} \frac{g \mu_B B}{2kT} \right], \quad (1.7)$$

де *S* – загальна величина спіна;

 $S_z - z$ компонента спіну (функція Бріллюена);

 μ_B – магнетон Бора;

В – індукція магнітного поля;

 a_2 – коефіцієнт нормування температурної залежності ρ_m (*T*, *B*).

У співвідношення (1.7) входить складний для обчислень параметр нормування (*a*₂). Величина *р_m* визначалося із співвідношення:

$$ho_m =
ho_{e\kappa c} -
ho_{pos}$$
 ,

де *ρ_{екс}* – експериментальна величина питомого опору для гранульованої плівки; *ρ_{роз}* – величина що розрахована за співвідношенням Дебая. Авторами [26] $\rho_{\rm m}$ був розрахований як $\rho_{\rm m} = \rho_{e\kappa c} - \rho_{posp}$, де $\rho_{e\kappa c}$ – експериментальна величина питомого опору гранульованих плівок, ρ_{posp} – розрахункова за формулою Дебая:

$$\rho_c(T) = a_1 \cdot \left(\frac{T}{\Theta_D}\right)^3 \int_0^{\frac{\Theta_D}{T}} \frac{x^2 dx}{e^x - 1},$$

де Θ_D – температура Дебая;

а1 – нормалізований коефіцієнт.

Слід зазначити, що теорія Дебая була побудована для масивних зразків чистих металів, тому її застосування авторами [26] було не зовсім коректним. У зв'язку з цим нами була модифікована методика авторів [27]. Суть її полягає у наступному. Після логарифмування і диференціювання по індукції співвідношення (1.7), отримаємо робоче співвідношення (1.8):

$$\beta_{mB} = \frac{d \ln \rho_m}{dB} = \frac{-0.5(2S+1)\frac{1}{\sinh^2\left[(2S+1)x\right]}\frac{(2S+1)x}{B}}{S-0.5(2S+1)\coth(2S+1)x+0.5\coth x} + \frac{0.5}{\sinh^2 x} \cdot \left(\frac{x}{B}\right) + \frac{0.5}{S-0.5(2S+1)\coth(2S+1)x+0.5\coth x}, \quad (1.8)$$

де через х позначена величина $\frac{g\mu_B B}{2kT}$ (g = -2 – гіромагнітне відношення для електрона; μ_B – магнетон Бора).

При розрахунку β_{mB} при *T*=300К, *B*=1Т треба мати на увазі, що коли х<<1

$$\cot \Box [(2S+1)x] \cong \frac{1}{(2S+1)x};$$
$$\cot \Box x \cong \frac{1}{x}; \sin \Box^2 [(2S+1)x] \cong [(S+1)x]^2 \text{ ta } \sin \Box^2 x \cong \frac{x^2}{4},$$

тоді співвідношення (1.8) можна спростити до наступного $(\text{coth } x)' = -1/\sinh 2x$,

отримуємо співвідношення для β_{mB} (при T = 300 K і B = 1 T):

$$\beta_{mB} \cong \frac{-0.5 \cdot \frac{(2S+1)}{(S+1)} \cdot \frac{B}{x} + \frac{2B}{x}}{S - 0.5(2S+1) \cdot \frac{B}{x} + \frac{4B}{x}}.$$
(1.9)

Проведені розрахунки при заданих S дали наступні результати:

$$\beta_{mB} = -27 \ 10^{-2} \ \mathrm{T}^{-1} \ (S = 5); \ -11,5 \cdot 10^{-2} \ \mathrm{T}^{-1} \ (S = 10); \ -2,1 \ \cdot 10^{-2} \ \mathrm{T}^{-1} \ (S = 50);$$

-1,06 $\cdot 10^{-2}$ T⁻¹ (S = 100) i -0,1 10^{-2} T⁻¹ (S = 1000, що є екстремальною і малоймовірною величиною).

Розрахункові величини β_{mB} до деякої міри узгоджуються із експериментальними результатами для плівок але при дуже великих значеннях спіну гранул, порядка 10³. Очевидно, що гранула із таким великим спіном, скоріше за все буде багатодоменною і на ній буде реалізуватися звичайне електрон-магнонне, а не спін-залежне розсіювання електронів.

Таким чином, у випадку аномально малих значень ГМО СЗРЕ може реалізуватися лише в обмеженій мірі, тобто на гранулах із величиною спіна 100 – 1000 одиниць. Гранули із такими спінами можуть сформуватися на основі відносно малих гранул, але концентрація цих великоспінових гранул буде малою, що і обумовить аномальні значення ГМО. Для порівняння наведем величину спіна із роботи [26] для гранульованих плівок на основі Fe i Ag спін S = 17 при $r_0 \cong 3-4$ нм. Із цих даних можна зробити висновок, що у випадку, коли β_{mB} має порядок 10^{-3} T⁻¹, проявляє себе у не повній мірі C3PE, а звичайний омічний механізм провідності і, як наслідок, з великим опором і відносно малим (10^{-3} T⁻¹) магнітним коефіцієнтом β_{mB} . Оскільки при ГМО $\cong 1-10^{-2}$ % β_{mB} має порядок 10^{-3} T⁻¹, то необхідно зробити висновок, що у таких зразках недосконала система гранул, яка не забезпечує ефективне C3PE. Цей висновок ще більш переконливо підтверджується якщо провести в $d \ln \rho_{m}$

рамках моделі [26] розрахунки *ТК* $\rho_m = \beta_{mB} = \frac{d \ln \rho_m}{dB}$.

Після диференціювання по температурі співвідношення (1.7) можна записати:

$$\beta_{mT} = \frac{-0.5(2S+1)\frac{1}{\sinh^2\left[(2S+1)x\right]}\left(-\frac{(2S+1)x}{T}\right)}{S-0.5(2S+1)\coth\left[(2S+1)x\right]+0.5\coth x} + \frac{\frac{0.5}{\sinh^2 x}\cdot\left(-\frac{x}{T}\right)}{S-0.5(2S+1)\coth\left[(2S+1)x\right]+0.5\coth x}.$$
(1.10)

Після спрощення (1.10) отримуємо співвідношення ТК ρ_m у кінцевому вигляді (при B = 1 T):

$$\beta_{mT} = -\frac{2\left(\frac{2S+1}{\left(S+1\right)^2} - 1\right)}{S \cdot x \cdot T}.$$
(1.10)

Проведені розрахунки величини β_{mT} при заданих S і T = 300 K дали наступні результати:

$$\beta_{mT} = 22,9 \cdot 10^{-2} \text{ K}^{-1} \text{ (S} = 10); 9,05 \cdot 10^{-2} \text{ K}^{-1} \text{ (S} = 30);$$

 $2,3 \cdot 10^{-2} \text{ K}^{-1} \text{ (S} = 100); 1,4 \cdot 10^{-2} \text{ K}^{-1} \text{ (S} = 1000).$

Крім цього, співвідношення (1.10') можна порівняти із дуже коректними вимірюваннями ρ від Т і розрахунковими величинами спінів гранул на основі атомів Fe у матриці т.р.- Ag(Fe), який формується на основі ультратонких шарів у мультишарах: Ag(2,6)/[Fe(0,2)/Ag(2,6)]₇₅ /[Fe(1,5)/Ag(2,6)]₂₅ /Ag(2,6)/Si.

У результаті міжшарового перемішування атомів формується гранульований т.р. із середнім розміром гранул до 10 нм. На основі магнітних вимірювань було встановлено, що $S \cong 500$ при низьких температурах (нижчих 100 К), а при аналізі температурної залежності ρ_m (*T*) була зафіксована фракція гранул із S = 17.

Виходячи із залежності ρ_m (*T*) нами розрахований ТК ρ_m в двох температурних інтервалах [32]:

$$\beta_I = 2,92 \cdot 10^{-2} \text{ K}^{-1} (80 - 200 \text{ K}) \text{ ta } \beta_2 = 0,37 \cdot 10^{-2} \text{ K}^{-1} (200 - 300 \text{ K}).$$

Розрахунки величини β_{mT} при різних значеннях S показали наступні результати :

S	17	300	400	500	750	1000	Примітка
β_{mT} ·10 ² , K ⁻¹	62,0	3,94	2,96	2,40	1,60	1,20	ΔТ1=80-200 К
β_{mT} ·10 ² , K ⁻¹	15,5	0,98	0,74	0,60	0,40	0,30	ΔТ ₂ =200-300 К

Установлено [32], що у низькотемпературному інтервалі співпадіння експериментальних і розрахункових даних відбувається при S = 400 - 500, а у високотемпературному при малоймовірних значеннях S = 500 - 750. Аномально малі величини (критерій малості досить умовний і в нашому випадку вибрані величини МО менше 0,5 %) можна пояснити реалізацією неефективного СЗРЕ через недосконалу систему гранул (це мало впливає на абсолютну величину ГМО, але задає хід залежності R від B) і звичайного омічного механізму провідності, який і визначає абсолютну величину МО.

Під недосконалою системою гранул ми розуміємо відносно малу їх концентрацію, знаходження у суперпарамагнітному стані, малу величину спіна через наявність у гранулах атомів парамагнітного металу, великий розкид за розмірами і, звичайно, малу загальну товщину плівки. Але, навіть, у цьому випадку, коли омічний канал провідності частково шунтується низькоомним спіновим каналом, реалізується МО із усіма ознаками ГМО. Для загальної

величини ТКО нами був вибраний критерій малості – виконання умови: ТКО менше 5·10⁻³ К⁻¹.

У наших більш ранніх роботах [29, 30] було проаналізовано питання про фізичну причину аномально малих (нижче мінімального теоретичного рівня) коефіцієнтів тензочутливості (КТ). Виявилося, що збільшення коефіцієнта Пуасона до гранічної величини (0,5 од.) і обумовлює зменшення КТ до граничного значення 1,7 одиниць. Подібних прикладів ще можна навести, і це наводить на думку, що реалізація аномальних значень різних фізичних параметрів є універсалною особливістю тонкоплівкових зразків, як у нашому випадку – ГМО і ТКО, при чому така ситуація має не випадковий, а системний характер.

Як підтвердження цьому висновку можуть служити також результати роботи [31], в якій методом магнітооптичного ефекту Керра (МОКЕ) вимірювалася коерцетивність у плівках Fe/Pt/П (загальна товщина d = 35 нм) і у мультишарах [Fe(3)/Pt(3)]8 /П при їх поздовжній (l) і поперечній деформації (t) до 10 %. На фоні в цілому малої величини Bc = 16 млТ при l – деформації спостерігається аномально мала величина Bc = (0, 2 - 0, 3) млТ при t деформації. При цьому у мультишарах коерцітивність має більшу величину у порівнянні із двошаровим зразком, в якому відповідальність за магнітні властивості несе плівка Fe, в той час як у мультишарі можливе перемішування атомів і формування гранульованого плівкового сплаву.

Основна причина підвищеної зацікавленості до гранульованих плівкових сплавів полягає у тому, що змінюючи компоненти системи та концентрацію атомів окремих компонент можна досягти суттєвих змін у електрофізичних і магніторезистивних властивостях, зокрема, спричинити отримання низького значення параметру ТКО (висока термостабільність), високого КТ (висока чутливість до деформації) або виникнення ефекту ГМО. Розуміння фізичних причин реалізації вказаних властивостей дозволяє встановити їх взаємозв'язок із властивостями плівкового матеріалу та виготовити тонкоплівкові чутливі елементи сенсорної електроніки з наперед заданими параметрами і характеристиками, стабільними або дуже чутливими до впливу зовнішніх фізичних полів (температури, деформації, магнітного поля).

За останні роки значно розширилась номенклатура сенсорів і галузі їх ефективність і точність застосування, підвищились вимірювання. Для потреб задоволення постійно зростаючих сучасної техніки потрібні високочутливі швидкодіючі багатофункційні сенсори, працездатні у складних умовах експлуатації: у розширених температурних інтервалах, магнітних полях, при опроміненнях, а також в умовах деформації, ударних і вібраційних навантажень.

Серед основних вимог до сучасних сенсорних електронних систем виділяють: мініатюрність, механічну міцність, багатофункціональність, високу точність перетворення, термостабільність, простоту у застосуванні, мінімальне енергоспоживання при можливості функціонування 3 низьковольтними джерелами живлення. Забезпечення розглянутих вимог визначається структурними та схемотехнічними рішеннями, розвиток яких за останній період набув значної актуальності.

Мета науково-технічної роботи полягала у встановленні закономірностей взаємозв'язку між структурним і магнітним станами та електрофізичними і магнітними багатокомпонентних (середньоi властивостями високоентропійних) плівкових сплавів та розробка методики формування багатокомпонентних плівкових наноматеріалів. Побудова асимптотичної теорії (дрейфу) феромагнітних спрямованого транспорту наночастинок, ШО індукується у в'язкій рідині періодичним у часі градієнтним магнітним полем при наявності зовнішніх постійних магнітних полів.

1 МЕТОДИКА ФОРМУВАННЯ ВИСОКОЕНТРОПІЙНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ (ВЕС) ТА ВИМІРЮВАННЯ ЕЛЕКТРОФІЗИЧНИХ І МАГНІТОРЕЗИСТИВНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ

1.1 Кристалічна структура

Дослідження фазового складу здійснювалося методом електронографії та просвічуючої електронної мікроскопії (прилад ПЕМ-125К).

Квадратичні форми для кубічної та гексагональної сингоній мають такий вигляд [14]:

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a_{hkl}^2}, \quad a_{hkl} = d_{hkl}\sqrt{h^2 + k^2 + l^2},$$

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{4}{3} \cdot \frac{h^2 + kh + k^2}{a_{hkl}^2} + \frac{l^2}{c_{hkl}^2}, \ a_{hk0} = \frac{2}{\sqrt{3}} d_{hk0} \sqrt{h^2 + kh + k^2}, \ c_{00l} = ld_{00l},$$

де *d*_{hkl} – міжплощинна відстань;

h, k, l – індекси Міллера;

*a*_{hkl} і *c*_{hkl} – параметри кристалічних решіток у межах відповідних сингоній.

Як еталон використовували відпалену плівку А1 товщиною d = 30 - 40 нм, що забезпечувало точність вимірювання міжплощинних відстаней $\Delta d_{\rm hkl} = \pm (10^{-3} - 10^{-4})$ нм.

На рис. 1.1 наведені приклади типової дифракційної картини і мікроструктура багатокомпонентних плівкових матеріалів на основі Fe, Co, Al, Ni та Cu y невідпаленому і відпаленому до 800К стані. Плівкові зразки мають нееквіатомний склад, що проявляється у деяких відмінностях мікроструктури як у вихідному стані, так і після термообробки.



Рисунок 1.1 – Дифракційні картини (а) і мікроструктура плівкових систем Fe(22)/Co(17)/Al(12)/Ni(10)/Cu(13)/П (b,c) та Fe(18)/Co(12)/Al(15)/Ni(17)/ Cu(17)/П (d, e) у невідпаленому (a,b,d) і відпаленому до 800 К стані (c, e)

Установлено, що у плівкових ВЕС основними фазами можуть бути ГЦК фази на основі Cu із параметром a = 0.3604 - 0.3650 нм або a = 0.4016 - 0.4050 нм при надлишку Al в сплаві. Поряд з лініями від базової ГЦК фази спостерігаються сліди твердого розчину a-Fe(Cr) або інтерметаліду NiAl.

Мікрочастинки темного контрасту (квазігранули), на наш погляд, мають магнітну природу і відіграють важливу роль в електрофізичних і магніторезистивних властивостях. На них може відбуватись спін-залежне розсіювання електронів, що є необхідною умовою реалізації гігантського магнітного опору (ГМО). Той факт, що у нашому випадку, відпалені ВЕС мають фактично лише ГЦК – фазу можна пояснити ефективними процесами перемішування компонент і гомогенізації фазового складу при наших методиках формування плівкових матеріалів.



Рисунок 1.2 – Мікроструктура плівки Fe(14)/Co(17)/Al(21)/Ni(15)/Cu(7)/П у невідпаленому (а) і відпаленому (b) станах

1.2 Карти розподілу елементів

Вивчення складу ВЕС є складною задачею через поєднання різних елементів різних концентрацій. Високопродуктивні обчислювальні та експериментальні методи, такі як аналіз розрахункової фазової діаграми (CALPHAD) та експериментальні комбінаторні методи були запропоновані для скринінгу ВЕС шляхом ідентифікації співіснуючих фаз. Але найбыьше застосування знайщов метод енергодисперсійної рентгенівської спектроскопії (EDX) для отримання карт високої роздільної здатності фракції кожного хімічного елемента в ВЕС. За допомогою методу EDX (рис. 2.6) визначено концентрацію всіх компонентів ВЕС (табл. 1.1), а також отримано карти розподілу елементів Al, Cr, Fe, Co, Ni та Cu від високоентропійного еквіатомного плівкового сплаву на основі Al, Cr, Fe, Co, Ni i Cu в об'ємі плівки. Даний метод забезпечує похибку вимірювання концентрації компонентів не більше 1 ат.%.

Таблиця 1.1 – Елементний склад сплаву на основі Al, Cr, Fe, Co, Ni i Cu (ат.%, n=6)

Сплав	Al	Cr	Fe	Со	Ni	Cu
ат.%	11,0	12,5	11,0	22,9	29,5	12,9





1.3 Електрофізичні та магніторезистивні вимірювання

Плівкові матеріали із різним ступенем ентропійності на основі Fe, Ni, Co, Cu, Al i Cr формувались у вакуумній установці ВУП-5М, вимірювання електрофізичних властивостей проводилось у надвисоковакуумній установці (Puc.1.4), а магніторезистивних властивостей на атмосфері.

Багатокомпонентні плівкові ВЕС конденсувались методами пошарової або одночасної (рис. 1.5) конденсації 5-6-ти металів на підкладки (П) із ситалу або SiO₂/Si. Температура підкладки $T_{\rm n} = 300 - 500$ K, температура відпалювання $T_{\rm B} = 300 - 900$ K.



Рисунок 1.4 – Схема установки для відпалювання плівкових ВЕС зразків: 1 – підкладка-столик; 2 – зразок; 3 – гвинти для закріплення притискних контактів 4; 5 – термопара; г – схема автоматизованої системи для вимірювання ТКО Метали випаровувались електронно-променевим (Co) та терморезистивним (Fe, Ni, Cr, Al, Cu) методами, товщина окремих шарів при пошаровій конденсації варіювалась від 10 до 30 нм. Швидкість конденсації металів змінювалась від 0,1 до 10 нм/хв. Методика отримання зразків спочатку була апробована на трикомпонентних середньоентропійних плівках (див., наприклад, [29]). Конструкція випарників для одночасної і пошарової конденсації показана на рис.1.5.

Товщина осаджених металів контролювалася "*in situ*" методом кварцового резонатора. Частота вихідного сигналу вимірювалась частотоміром на мікроконтроллері ATmega 328 з можливістю передачі даних на персональний комп'ютер через послідовний інтерфейс USB. Для кращої візуалізації та контролю товщини металів використовувалось програмне забезпечення у середовищі програмування Arduino.

Дослідження температурної залежності питомого опору ВЕС проводилося у вакуумній камері установки ВУП-5М при тиску газів залишкової атмосфери $p \cong 10^{-4}$ Па.



Рисунок 1.5 – Конструкція випарників для одночасної і пошарової конденсації (б): 1 – підкладка; 2 – свідки для вимірювання товщини; 3 – система суміщених екранів; 4 – вольфрамові випарники; вольфрамові випарники; 5 – керамічний ізолятор Геометричні розміри масок для дослідження температурної залежності електричного опору становили 1×10 мм. Термообробка зразків проводилася протягом декількох циклів «нагрівання ↔ охолодження» у автоматизованому режимі, який дозволив здійснювати контроль швидкості нагрівання зразків, записувати та обробляти експериментальні дані.

Для реалізації автоматизованого режиму використовувався програмноапаратний комплекс, програмне забезпечення якого керування ДЛЯ обладнанням розроблено середовищі графічного експериментальним y програмування LabVIEW. Отримання температурної залежності питомого опору і розрахунок ТКО плівкових ВЕС здійснювалось (рис. 1.4) за двохточковою схемою. При охолодженні спостерігається лінійна залежність р(Т) і типова залежність $\beta(T) \sim 1/T$. Величина ТКО при T=300К змінюється у межах (1,8 – 3.0) 10⁻³К⁻¹ (рис. 1.6).

Результати досліджень вказують на те, що в зразках при відпалюванні відбувається гомогенізація ВЕС і незалежно від базової фази формуються ВЕС сплави з приблизно однаковим елементним складом. Немонотонний характер залежності $\rho(T)$ пов'язаний із процесами упорядкування атомів у плівковому



Рисунок 1.6 – Приклад температурної залежності опору і ТКО (на вставці) для BEC Fe(18)/Co(12)/Al(15)/Ni(17)/Cu(17)/П. Із роботи [19]

Зразок (<i>d</i> , нм)	<i>d</i> , нм	Концентрація, ат.%	$\beta^{\cdot}10^{3},$ K ⁻¹
Al(20)/Co(34)/Fe(32)/Ni(38)/Cu(31)/Π	155	18/22/23/23/13/П	3,00
Cu(17)/Ni(17)/Al(15)/Co(12)/Fe(28)/П	89	20/21/12/15/32/П	3,64
Fe(28)/Co(12)/Al(15)/Ni(17)/Cu(17)/Π	89	33/15/12/21/19/П	3,24
Fe(32)/Co(17)/Al(12)/Ni(10)/Cu(13)/Π	84	38/22/10/13/17/П	3,00
Fe(14)/Co(17)/Al(21)/Ni(15)/Cu(7)/Π	74	20/26/21/23/10/П	2,57
Cr(8)/Al(5)/Co(7)/Cu(5)/Ni(7)/Fe(7)/П	39	19/8/21/12/19/19/П	1,80
Al(4)/Cu(3)/Co(5)/Cr(5)/Fe(5)/Π	22	11/13/19/20/19/17/11/П	2,00

Таблиця 1.2 – ТКО для плівкових ВЕС при Т = 300 К [19]

Таблиця 1.3 – Температурний коефіцієнт опору для плівкових ВЕС при *T* = 300 К

Зразок (товщина, нм)	Товщина, нм	eta· 10 ³ , K ⁻¹
Fe(18)/Co(12)/Al(15)/Ni(17)/Cu(17)/Π	80	3,24
Fe(22)/Co(17)/Al(12)/Ni(10)/Cu(13)/Π	74	3,00
Fe(14)/Co(17)/Al(21)/Ni(15)/Cu(7)/Π	74	2,57
Cr(8)/Al(5)/Co(7)/Cu(5)/Ni(7)/Fe(7)/П	39	1,80
Al(4)/Cu(3)/Co(5)/Cr(5)/Fe(5)/Π	22	2,00

зразку. Такий висновок базується на тому, що криві охолодження, мають типовий для металів характер.

Дослідження властивостей середньо- і високоентропійних плівкових сплавів вказують на спільні особливості і закономірності умов реалізації ГМО, розмірних, температурних та концентраційних ефектів. Установлено, що при певних умовах у плівках ВЕС залежності питомого опору від індукції магнітного поля мають усі ознаки ГМО із амплітудою (0,1-0,3)%.

2 КОНЦЕНТРАЦІЙНІ ЗАЛЕЖНОСТІ ЕЛЕКТРОФІЗИЧНИХ ВЕЛИЧИН

2.1 Питомий опір та ТКО

У даному розділі наведені результати дослідження електрофізичних та електронних властивостей плівкових ВЕС, а саме розрахунок концентраційних залежностей питомого опору (р), середньої довжини вільного пробігу електронів (СДВП) та енергії Фермі (є_F) на основі частково апробованої гіпотези про адитивність цих параметрів.

Зокрема, мова йде про коректність застосування при розрахунках наступних співвідношень:

$$\rho(x_i) = \sum_{l=1}^n c_l \rho_l + x_i \rho_i + \rho_r,$$

$$\lambda(x_i) = \sum_{l=1}^n c_l \,\lambda_l + x_i \lambda_i,$$

де індексом "*l*" позначаються номери базових елементів, які формують основну фазу BEC, а індексом "*i*" – допіруючий елемент.

Слід відмітити, що при розрахунках $\rho(x_i)$ і $\lambda(x_i)$ [32, 33] ми використовували масив власних даних, накопичених при вивченні розмірних ефектів у параметрах електроперенесення одношарових плівок. При розрахунках ε_F (x_i) були використані літературні дані для масивних металів.

Були вивчені властивості чотири-, п'яти- та шестикомпонентних плівкових ВЕС на основі Fe, Co, Ni та Cr; Fe, Co, Ni, Cu та Cr i Fe, Co, Ni, Cu, Cr та Al. Величина x_i складала 0; 0,05; 0,10; 0,15 та 0,20. На рис.2.1 представлені розрахункові дані для чотири- і п'ятикомпонентних плівкових сплавів, які при усіх значеннях *x* представляють собою три- або чотирикомпонентні еквіатомні системи. Відмітимо, що величини питомого опору добре узгоджуються із аналогічними даними для п'ятикомпонентних плівкових сплавів [6,7].

Це говорить на користь правильності нашої гіпотези про адитивність питомого опору однокомпонентних плівок, на основі яких формується ВЕС.

Нами була запропонована [30-32] концепція досліджень, виходячи із умови адитивності питомого опору т.р. ВЕС.

$$\rho_{s.s.} = \sum_{l=1}^{n} c_{l} \rho_{l} + \rho_{r}, \qquad (2.1)$$

де $\rho_{r.p.}$, ρ_i і $\rho_r << \rho_{r.p.}$ питомий опір т.р., питомий опір окремих компонент і питомий опір відповідно;

*c*_i – концентрація і-ї компоненти.

Співвідношення для ТКО можна записати так:

$$\beta_T = \frac{d \ln \rho}{dT} = \frac{1}{\sum_{i=1}^n c_i \rho_i} \frac{\partial}{\partial T} \left(\sum_{i=1}^n c_i \rho_i \right) = \frac{\sum_{i=1}^n c_i \rho_i \beta_{T_i}}{\sum_{i=1}^n c_i \rho_i}.$$
 (2.2)

2.2 Тензочутливість

2.2.1 Базові співвідношення [35]

Тензорезистивні властивості одно- і багатошарових металевих плівок вивченні досить детально s лише деякі аспекти проблеми потребують уточнення (наприклад, температурна залежність коефіцієнтів тензочутливості). Необхідно відмітити, що в даному випадку мова йде про плівкові матеріали, які фактично або умовно можна віднести до низько- або середньоентропійних матеріалів. Відмітимо, що виходячи із означення, для коефіцієнта поздовжньої тензочутливості γ₁ можна записати базове співвідношення у такому вигляді

$$\gamma_l = \frac{dln\rho}{d\varepsilon_l} - 1 + 2\mu_f, \tag{2.3}$$



Рисунок 2.1 – Залежність питомого опору від концентрації х для чотирикомпонентних (a) BEC (т.р. FeCoNi)_{1-x} – Cr_x (1); (т.р. FeCoCr)_{1-x} – Ni_x (2); (т.р. FeNiCr)_{1-x} – Co_x (3); (т.р. CoNiCr)_{1-x} – Fe_x (4) та для п'ятикомпонентного (b) BEC (т.р. FeCoNiCu)_{1-x} – Cr_x (1); (т.р. FeCoCrCu)_{1-x} –Ni_x (2); (т.р. FeCoNiCr)_{1-x} – Cu_x (3); (т.р/ CoNiCrCu)_{1-x} – Fe_x (4) та (т.р. FeCoNiCr)_{1-x} – Co_x (5)

де ρ - питомий опір плівкового матеріалу, $\rho = \sum_{(i)} c_i \rho_i + \rho_r;$

- *є*і поздовжня деформація;
- *l* довжина зразка;

*μ*_f – коефіцієнт Пуассона плівки;

 ρ_r - залишковий питомий опір.

Із співвідношення (2.3) слідує, що при умові $\frac{dln\rho}{d\varepsilon_l} = 0$ гранична величина КТ γ_l^b дорівнює 1,5-1,7 при величині $\mu_f = 0,25-0,30$ в умовах пружної деформації. Оскільки експериментальні величини γ завжди більше за γ_l^b , то надлишкове значення γ пов'язане з першим додатком у співвідношенні (2.3).

При аналізі тензорезистивних властивостей багатокомпонентних нанорозмірних плівкових сплавів, відносяться які до середньо або високоентропійних твердих розчинів (т.р.) у кристалічному стані можна звести до мінімуму роль внутрішнього та зовнішнього РЕ і враховувати лише деформацію залежність λ₀. Іншими словами, такий плівковий матеріал можна розглядати як одношарову плівку т.р.

Автор [26] перетворив співвідношення (2.3) до вигляду:

$$\gamma_l = -\left(\frac{dln\lambda_0}{d\varepsilon_l} + \frac{dlnn}{d\varepsilon_l}\right) + \frac{2dln\theta_D}{d\varepsilon_l} + 1 + 2\mu_f, \qquad (2.4)$$

де n – концентрація електронів провідності;

θ_D – температура Дебая матеріалу плівки.

Співвідношення (3.4) можна переписати [36] через параметр Грюнайзена (у):

$$\gamma_l = \left(2\gamma - 4\mu_f\gamma\right) + 2(1+\mu_f),\tag{2.5}$$

де
$$\gamma = \sum_{(i)} c_i \gamma_i i \ \mu_f = \sum_{(i)} c_i \mu_{f_i}, як i \ \theta_D = \sum_{(i)} c_i \theta_{Di}$$

Відмітимо, що адитивність γ , $\mu_{\rm f}$ і $\theta_{\rm D}$ слідує із адитивності питомого опору $\rho = \sum_{(i)} c_i \rho_i$. Це припущення успішно спрацювало при розрахунку ТКО

$$\beta_{\rm T} = \frac{\partial \ln \rho}{\partial T}$$

та при розрахунках магнітного коефіцієнта ГМО $\beta_B^{\Gamma MO}$ для ВЕС на основі Fe,Co,Ni,Al та Cu. У обох випадках розрахункові дані дуже добре відповідають експериментальним даним [20]. Це виступає підставою для використання цього підходу при аналізі тензорезистивних властивостей багатокомпонентних плівкових сплавів з тим же елементним складом як і у випадку β_T і $\beta_B^{\Gamma MO}$.

2.2.2 Розрахунок залежностей

Розрахунок залежностей був здійснений із використанням співвідношення (2.5). Оскільки в літературі відсутні дані стосовно величини γ_i та μ_{fi} для одношарових плівок, то ми скористалися, допускаючи певну похибку в розрахунках, відповідними значеннями для масивних металів.

Розрахункові дані представлені на рис.2.2. Відмітимо при цьому, що у випадку $\gamma = 1,80$ і $\mu_f = 0,28$ розрахункова величина γ_e порівнюється із експериментальним значенням (Рис.3а, П-Шдеформаційний цикл) із роботи [21]:

$$\gamma_{eexp} = \frac{\Delta\left(\frac{\Delta R}{R(0)}\right)}{\Delta \varepsilon l} = 4,80$$
 при $\gamma_{e_{pos}} = 4,30 \left(\frac{\Delta \gamma_e}{\gamma_{eexp}} = 10\%\right).$

Для того, щоб пояснити вплив параметра Грюнайзена на величину γ_e ми здійснили розрахунок залежності γ_e від μ_f і для інших трьох значень γ (рис.2.2 а). Можна зробити висновок, що у межах пружної і квазіупружної деформації ($\varepsilon_e \approx 0.4$ %) величина параметра Грюнайзена дуже несуттєво впливає на величину γ_e . Цей же висновок до великої міри підтверджується розрахунками залежності γ_e від γ (рис. 2.2 б). Оскільки γ_l може бути представлено із доданків, перший із яких відповідає за електронні властивості



Рисунок 2.2 – Залежність КТ від $\mu_{\rm f}$ (а) та γ (b) при $\gamma = 1,8$ (\blacksquare); 2 (\bullet); 2,5 (Δ) і 2,8 (O) та при $\mu_{\rm f} = 0,25$ (\blacksquare); 0,28 (\bullet); 0,50 (Δ) і 0,75 (O)

(т.зв. внутрішній фактор), а другий пов'язаний із зміною геометричних розмірів зразка (геометричний фактор), то теоретично можливо, що вони, діючи у протилежних напрямках, можуть обумовити нульове значення γ_e .

На рис.2.2 вказані ці граничні величини, що позначають як $\mu_{f_0} = \frac{\gamma+1}{2\gamma-1}$ (отримується із умов, що права частина рівняння (2.5) дорівнює нулю). Фізична природа нульового значення γ_e витікає із формули (1), яку ми перепишемо через т.зв. деформаційний коефіцієнт λ_0 , який позначається $\eta_{\lambda_0} = -\frac{2d}{2\varepsilon_e} = 1 + \eta_{\lambda_0}$. Від'ємне значення η_{λ_0} (тобто електрони провідності прискорюються при поздовжній деформації) можна практично забезпечити величину $\gamma_e = 0$.

Уперше проведені дослідження залежності КТ багатокомпонентних плівкових матеріалів від коефіцієнта Пуасона μ_f та параметра Грюнайзена γ в області пружної ($\mu_f \leq 0,4$) та квазіупружної ($\mu_f > 0,4$) деформації. У першому випадку величина SC мало чутлива до зміни величини γ в межах 1,5-2,5, у той же час при пластичній деформації в цьому ж інтервалі параметра Грюнайзена величина SC зменшується від 3 до 1 одиниць. У рамках феноменологічної моделі для SC розраховані величини μ_f , при яких величина $\gamma_1 \cong 0$, що пов'язано із взаємною конкуренцією т.зв. внутрішнього і геометричного факторів.

КТ Нами зроблено максимальне висновок, ЩО значення y багатокомпонентних нанорозмірних плівкових сплавах, отриманих одночасною конденсацією компонент, може досягати значення в 5 одиниць. У той же час при пошаровій конденсації окремих компонент величина КТ в області пружної деформації може досягати декількох десятків одиниць завдяки інтерфейсному розсіюванню електронів провідності. З точки зору тензометрії чутливий елемент сенсора на основі багатокомпонентного плівкового сплаву, в т.ч. і ВЕС, має перевагу перед іншими нанорозмірними плівковими матеріалами [28], яка пов'язана із їх фазовою стабільністю у широкому інтервалі температур.

Співвідношення для КТ т.р. ВЕС [23, 25] в загальному вигляді:

$$\gamma_{l} = \frac{1}{\sum_{i=1}^{n} c_{i} \rho_{i}} \frac{\partial}{\partial \varepsilon_{l}} \left(\sum_{i=1}^{n} c_{i} \rho_{i} \right) + 1 + 2 \sum_{i=1}^{n} c_{i} \mu_{i} =$$

$$= \frac{\sum_{i=1}^{n} c_{i} \rho_{i} (\gamma_{li} - 1 - 2\mu_{fi})}{\sum_{i=1}^{n} c_{i} \rho_{i}} + 1 + 2 \sum_{i=1}^{n} c_{i} \mu_{i}.$$
(2.6)

Відмічаємо, що при використанні у (2.5) і (2.6) експериментальних величин, розмірні ефекти будуть враховуватися автоматично.

2.3 Електронні властивості плівкових ВЕС

Наведені факти послугували нам підставою за методикою розрахунків для питомого опору провести аналогічні розрахунки для СДВП (Рис.2.3) з метою установлення кореляції між ρ і λ . Параметри ρ і λ пов'язані між собою співвідношенням $\rho \sim 1/\lambda$, тобто із зменшенням λ величина ρ зростає і навпаки. Лише у випадку залежності 2 (Рис.2.3а) та 3 (Рис. 2.3б) кореляція не спостерігається. Причина цього може бути пов'язана із неточністю даних стосовно залежності від товщини одношарових плівок величини ρ і λ . При цьому похибка величини ρ може бути пов'язана із неточністю визначення товщини, в той час як точність розрахунків λ перш за все визначається теоретичною моделлю.

Були проаналізовані питання стосовно концентраційних залежностей енергії та поверхні Фермі і зроблено висновок про те, що поверхня Фермі при переході від середньо- до високоентропійного плівкового сплаву суттєво не змінюється.

Проведені дослідження електронних властивостей плівкових ВЕС із 4, 5 і 6 компонент. Зокрема були розраховані концентраційні залежності ρ , λ і ε_F при умові, що концентрація допіруючого елементу х змінювалася в інтервалі 0,05-0,20, а сам ВЕС представляє розбавлений твердий розчин із змінною концентрацією (1-х).







Рисунок 2.3 – Залежність СДВП від концентрації *х* для чотирикомпонентних (a) і п'ятикомпонентних (b) плівкових ВЕС. Позначення такі як на рис. 2.1

Виходячи із допущення про адитивність ρ , λ -1 і ε_F , були розраховані концентраційні залежності цих параметрів для 4, 5 і 6 компонентних ВЕС. Була установлена добра кореляція між ρ і λ у вигляді $\rho \sim A/_{\lambda}$, де A – деяка константа.

Авторами [15] також був здійснений розрахунок середньої довжини вільного пробігу електронів залежно від концентрації атомів Al при T = 5 і 300К. У першому випадку вказана залежність має різний характер: при 5К величина λ монотонно зменшується від 94 нм (x = 0,25 ат.%) до 33 нм (x = 1,25 ат.%), а при T = 300K λ у тому ж концентраційному інтервалі немонотонно збільшується від 72 нм до 128 нм.

Таку нестандартну залежність λ від Т можна пояснити лише тим фактом, що згідно висновків авторів [15], провідність зразків має дірковий характер. Велика кількість оригінальних результатів авторів [15] дозволяє прослідкувати концентраційну залежність питомого опору і енергії Фермі для ВЕС (Co-Cr-Fe-Ni)_{1-x}-Al_x. Спостерігаються майже монотонні залежності $\rho(x_{Al})$ і $\varepsilon_F(x_{Al})$: $\rho(x_{Al})$ при 250К збільшується в інтервалі (110-190)·10⁻⁷ Ом.м, а $\varepsilon_F(x_{Al})$ при 300К зменшується від 6,94 eV ($x_{Al} = 0,50$ ат.%) до 2,15 eV ($x_{Al} = 1,25$ ат.%).

Результати роботи [15] використовувались нами для порівняння наших розрахункових і експериментальних [15] даних, оскільки ВЕС з точки зору параметрів електропенесення можна розглядати як одношарову плівку. За результатами авторів [15] величина λ_{експ.} ≅ 70 нм, що відповідає нашим даним на концентраційній залежності (Рис.2.3).

3 КОНЦЕНТРАЦІЙНІ ЗАЛЕЖНОСТІ ДИНАМІЧНИХ ТА ТЕРМОДИНАМІЧНИХ ВЕЛИЧИН

У даному розділі вивчені концентраційні залежності термодинамічної характеристики (температури плавлення твердого розчину $T_s^{s.s.}$) та динамічних характеристик (температури Дебая $\Theta_D^{s.s.}$ і параметра решітки $a_{\text{т.р.}}$ [24]. Аналізувалися чотири- і п'ятикомпонентні системи на основі Fe, Ni, Co, Cu та Al, в яких по черзі задавалася концентрація *x* однієї із компонент: (т.р. FeNiCoCu)_{1-x}Al_x; (т.р. FeNiCoAl)_{1-x}Cu_x і т.п., де *x* = 0; 0,10; 0,15; 0,20 та 0,30.

Необхідні дані стосовно T_s^{Me} , Θ_D^{Me} та a^{Me} , були взяті із літературних джерел [26, 27]. Результати стосовно концентраційної залежності $T_s^{s.s.}$ представляють практичний інтерес з точки зору прикладного застосування ВЕС. У той же час, результати $\Theta_D^{s.s.}$ і $a_{r.p.}$ представлять інтерес з точки зору розуміння динаміки решітки, оскільки на даний момент ніким не розглядалися.

3.1. Температура плавлення

При розрахунках температури плавлення $T_s^{s.s.}$ ми виходили із концепції адитивності [32, 33] і користувалися наступним співвідношенням у випадку чотирикомпонентної системи:

$$T_{s}^{s.s.} = \frac{1-x}{n-1} \cdot \left(T_{s}^{Me_{1}} + T_{s}^{Me_{2}} + T_{s}^{Me_{3}} \right) + x \cdot T_{s}^{Me_{4}}$$
(3.1)

де *n* – число компонент.

Множник $\frac{1-x}{n-1}$ вказує на те, що базова (фазоутворююча) комбінація атомів знаходиться у еквіатомному співвідношенні як при n = 4, так і при n = 5.

На рис. 3.1 наведені результати розрахунків залежностей $T_s^{s.s.}$ від концентрації x, які екстраполюються на T_s^{Me} при $x \to 1$.

У обох випадках ми вважаємо, що високоентропійність із стабільним фазовим складом обмежена інтервалом $0 < x \le 0,30$, а при $x \approx 0,30 - 0,50$ поряд із

ВЕС буде утворюватися багатокомпонентний сплав. За межами цього проміжного інтервалу буде сформований однофазний сплав на основі *Me*₄ або *Me*₅.

3.2. Температура Дебая і параметр решітки

Розрахунок $\Theta_D^{s.s.}$ для чотирикомпонентного ВЕС здійснювався за співвідношенням аналогічним (3.1):

$$\Theta_D^{S.S.} = \frac{1-x}{n-1} \cdot \left(\Theta_D^{Me_1} + \Theta_D^{Me_2} + \Theta_D^{Me_3}\right) + x \cdot \Theta_D^{Me_4}.$$
(3.2)

На рис. 3.2 наведені концентраційні залежності $a_{\text{т.р.}}$ для чотири – і п'ятикомпонентних систем, які, у попередніх випадках про екстрапольовані на параметр a^{Me_i} . Можна константувати факт, що незначні зміни $a_{\text{т.р.}}$ повністю корелюють із змінами $\Theta_D^{S.S.}$.

У випадку $\Theta_D^{s.s.}$ (рис. 3.3) ефект $\Delta \Theta_D^{s.s.}$ можна вважати незначним. Це можна пояснити близькістю величини Θ_D^{Me} для чотирьох металів Cu, Co, Ni i Fe, хоча Θ_D^{Al} відрізняється дуже суттєво. Зміну параметра решітки від концентрації атомів ми відносимо також до динамічних ефектів решітки. Розрахунок параметра решітки здійснювався за формулами, аналогічними (3.1) і (3.2).

У випадку чотирикомпонентної системи робоче співвідношення має такий вигляд:

$$a_{s.s.} = \frac{1-x}{n-1} \cdot \left(a^{Me_1} + a^{Me_2} + a^{Me_3} \right) + x \cdot a^{Me_4}$$
(3.3)

Таким чином, вперше проведений на феноменологічному рівні аналіз концентраційної залежності $T_s^{\text{т.р.}}$, $\Theta_D^{\text{т.р.}}$ і $a_{\text{т.р.}}$ ВЕС на основі 4-х або 5-ти компонент, хоча і не може претендувати на високу точність, але якісно він дозволяє вияснити поведінку температури плавлення, температури Дебая і параметра решітки ВЕС т.р.



Рисунок. 3.1 – Залежність $T_s^{s.s.}$ від концентрації *х* для чотирикомпонентних (а) та пятикомпонентних (б) ВЕС систем: (т.р. FeNiCo)_{1-x}Cu_x(1); (т.р. FeNiCu)_{1-x}Co_x (2); (т.р. FeCoCu)_{1-x}Ni_x(3); (т.р. NiCoCu)_{1-x}Fe_x(4); (т.р. FeNiCoAl)_{1-x}Cu_x(5); (т.р. FeNiCoCu)_{1-x}Co_x(6); (т.р. FeCoCuAl)_{1-x}Ni_x(7); (т.р. CoNiCuAl)_{1-x}Fe_x(8) та (т.р. FeCoNiCu)_{1-x}Al_x(9)



Рисунок 3.2 – Параметр решітки $a_{r.p.}$ для чотирикомпонентних (a) і п'ятикомпонентних (б) металевих систем: (т.р. FeNiCo)_{1-x}Cu_x(1); (т.р. FeNiCu)_{1-x}Co_x(2); (т.р. FeCoCu)_{1-x}Ni_x(3); (т.р. NiCoCu)_{1-x}Fe_x(4); (т.р. FeNiCoAl)_{1-x}Cu_x(5); (т.р. FeNiCoCu)_{1-x}Co_x(6); (т.р. FeCoCuAl)_{1-x}Ni_x(7); (т.р. CoNiCuAl)_{1-x}Fe_x(8) та (т.р. FeCoNiCu)_{1-x}Al_x(9)



Рисунок 3.3 – Залежність $\mathcal{O}_D^{s.s.}$ від концентрації *х* для чотирикомпонентних (а) та п'ятикомпонентних (б) ВЕС систем: (т.р. FeNiCo)_{1-x}Cu_x(1); (т.р. FeNiCu)_{1-x}Co_x(2); (т.р. FeCoCu)_{1-x}Ni_x(3); (т.р. NiCoCu)_{1-x}Fe_x(4); (т.р. FeNiCoAl)_{1-x}Cu_x(5); (т.р. FeNiCoCu)_{1-x}Co_x(6); (т.р. FeCoCuAl)_{1-x}Ni_x(7); (т.р. CoNiCuAl)_{1-x}Fe_x(8) (т.р. FeCoNiCu)_{1-x}Al_x(9). MCA – багатокомпонентний сплав; HEA – високоентропійний плівковий сплав

4 СПРЯМОВАНИЙ ТРАНСПОРТ ФЕРОМАГНІТНИХ НАНОЧАСТИНОК У В'ЯЗКІЙ РІДИНІ: АНАЛІТИЧНІ ТА ЧИСЛОВІ РЕЗУЛЬТАТИ

4.1 Однодоменні наночастинки

Нанофізика магнітних матеріалів – один з напрямів нанонауки, який активно розвивається. В останні роки він привертає все більшу увагу дослідників з різних областей хімії, фізики, біології та медицини. Магнітні матеріали та феномен магнетизму знайомі людству протягом давнього часу, і добре відомо, яку роль відіграють магнітні явища в житті сучасної людини.

З інтенсивним розвитком науки в останні десятиліття магнетизм нанорозмірних об'єктів виявився дуже актуальною тематикою поряд з фулеренами і вуглецевими нанотрубками. Науковці з різних областей фізики, хімії та матеріалознавства отримали великий об'єм результатів щодо властивостей різних нанооб'єктів: магнітних наночастинок, магнітних рідин, кластерів, активних порошків металів та нанотрубок.

Дослідження властивостей феромагнітних наночастинок (НЧ) в однодоменному стані актуальні і перспективні, в першу чергу, для біоінженерії та медицини [40-46]. Їх використання основане на особливостях магнітної і механічної динаміки. В моделі жорсткого диполя [47-51] динаміка вектору намагніченості повністю визначається трансляційним та обертальним рухами наночастинки і динаміку намагніченості можна взагалі виключити з розгляду. Актуальною на сьогодні також залишається проблема пошуку і реалізації нових фізичних принципів, які спричиняють спрямований транспорт наночастинок.

4.2 Динаміка наночастинок у градієнтному магнітному полі

Нехай градієнтне магнітне поле $\mathbf{H}_{a} = \mathbf{H}_{a}(x, t)$ задається формулою

$$\mathbf{H}_{q} = gx\sin(\Omega t + \phi)\,\mathbf{e}_{x},\tag{4.1}$$

а незалежне від часу зовнішнє однорідне магнітне поле Н має лише дві компоненти

$$\mathbf{H} = H_{\parallel} \mathbf{e}_{\chi} + H_{\square} \mathbf{e}_{\gamma}, \tag{4.2}$$

де $g(\geq 0)$ – градієнт магнітного поля;

 Ω – його частота, $\phi \in [0, \pi]$ –початкова фаза;

*H*_∥ і *H*_ℤ(≥ 0) – паралельна і перпендикулярна (до градієнтного поля) компоненти однорідного поля $H = \sqrt{H_{\parallel}^2 + H_{ℤ}^2}$ – величина вектору зовнішнього магнітного поля;

 $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z$ – одиничні вектори вздовж відповідних осей декартової системи координат.

Наночастинки однодоменні, а поле їх магнітної анізотропії настільки велике, що вектор намагніченості $\mathbf{M} = \mathbf{M}(t)$ ($|\mathbf{M}| = M = \text{const}$) може розглядатися вмороженим в тіло кожної наночастинки [52-57]:

$$\mathbf{M} = M(\cos\varphi \,\mathbf{e}_x + \sin\varphi \,\mathbf{e}_y),\tag{4.3}$$

де $\varphi = \varphi(t)$ – кут намагніченості (тобто кут між векторами \mathbf{e}_x і **M**). Вводячи кутову швидкість наночастинки $\boldsymbol{\omega} = \boldsymbol{\omega}(t)$, можна переконатися, що в моделі жорстких диполів кінематичне рівняння має вигляд [57]

$$\frac{d}{dt}\mathbf{M} = \boldsymbol{\omega} \times \mathbf{M} \tag{4.4}$$

Із (4.3) і (4.4) знаходимо $\boldsymbol{\omega} = \omega_z \mathbf{e}_z$, тобто наночастинки обертаються навколо осі z і $\omega_z = d\varphi/dt$.

$$\frac{d\varphi}{dt} = \frac{MV}{6\eta} \left[H_{\mathbb{Z}} \cos \varphi - H_{\mathbb{H}} \sin \varphi - gR_x \sin \varphi \sin(\Omega t + \phi) \right]$$
(4.5)

 $(\eta - в'язкість рідини, V = (4/3)\pi a^3 - об'єм наночастинки) і$

$$\frac{dR_x}{dt} = \frac{2Mga^2}{9\eta}\cos\varphi\sin(\Omega t + \phi)$$
(4.6)

 $(R_x = R_x(t) - x$ -координата центру частинки).

$$\nu_g = \frac{Mga}{6\eta\Omega}, \quad \nu_{\mathbb{Z}} = \frac{MH_{\mathbb{Z}}}{6\eta\Omega}, \quad \nu_{\mathbb{I}} = \frac{MH_{\mathbb{I}}}{6\eta\Omega}, \quad (4.7)$$

Рівняння (4.5) і (4.6) можуть бути зведені до системи двох диференційних рівнянь першого порядку для φ та r_x [57, 58]

$$\dot{\varphi} = v_{\mathbb{Z}} \cos \varphi - v_{\parallel} \sin \varphi - v_{q} r_{x} \sin \varphi \sin(\tau + \phi), \qquad (4.8)$$

$$\dot{r}_x = (4/3)v_g \cos\varphi \sin(\tau + \phi), \qquad (4.9)$$

де точка зверху позначає похідну відносно безрозмірного часу τ .

Рівняння (4.8) і (4.9), доповнені початковими умовами [57]

$$\varphi(0) = \varphi_0 \in [0, \pi], \qquad r_{x0} = r_x(0) \in (-\infty, \infty), \tag{4.10}$$

описують зв'язані обертальні та трансляційні рухи наночастинок у в'язкій рідині, що знаходиться під одночасною дією періодичного у часі градієнтного магнітного поля і постійного однорідного магнітного поля. Динаміка наночастинок при $v_g = 0$. У цьому найбільш простому випадку рівняння (4.8) можна легко розв'язати. Якщо $\varphi_0 \equiv \varphi(0) \ge \varphi_{\infty} \equiv \varphi(\infty)$, тоді рівняння (4.8) дає [21]

$$\varphi = \varphi_{\infty} + \arccos \frac{\cos(\varphi_0 - \varphi_{\infty}) + \tanh[(\nu_{\mathbb{Z}}^2 + \nu_{\parallel}^2)^{1/2}\tau]}{1 + \cos(\varphi_0 - \varphi_{\infty}) \tanh[(\nu_{\mathbb{Z}}^2 + \nu_{\parallel}^2)^{1/2}\tau]}$$
(4.11)

при $\varphi(0) > \varphi_{\infty} = \varphi(\infty)$ і

$$\varphi = \varphi_{\infty} - \arccos \frac{\cos(\varphi_0 - \varphi_{\infty}) + \tanh\left[\left(\nu_{\mathbb{Z}}^2 + \nu_{\parallel}^2\right)^{\frac{1}{2}}\tau\right]}{1 + \cos(\varphi_0 - \varphi_{\infty}) \tanh\left[\left(\nu_{\mathbb{Z}}^2 + \nu_{\parallel}^2\right)^{\frac{1}{2}}\tau\right]}$$
(4.12)

при $\varphi(0) < \varphi_{\infty}$. В цьому випадку динаміка кута намагніченості має релаксаційний характер (рис. 4.1), а центри частинок залишаються у рівноважному стані.



Рисунок 4.1 – Залежність кута намагніченості φ від безрозмірного часу τ .

Параметри системи: $\nu_{\mathbb{Z}} = 10$, $\nu_{\parallel} = 2$ (тобто $\varphi_{\infty} = 1.37$, горизонтальна пунктирна лінія), $\varphi_0 = 2.8$ rad (суцільна лінія 1, формула (4.11)) та $\varphi_0 = 0.4$ rad (суцільна

лінія 2, формула (4.12)). Чисельний розв'язок рівняння (4.8) позначено червоними круглими символами [57].

Динаміка наночастинок при $v_g \neq 0$ і $v_{\mathbb{Z}} = v_{\parallel} = 0$. У даному випадку спрямований транспорт (дрейфовий рух) наночастинок відсутній.

$$\int_{r_{x0}}^{r_x(\tau)} \frac{dr_x}{\cos\varphi(r_x)} = \frac{4}{3} \nu_g F(\tau), \qquad (4.10)$$

тобто координата $r_x(\tau)$ є також періодичною функцією часу: $r_x(\tau) = r_x(\tau + 2\pi n)$.

Динаміка наночастинок при $v_g \neq 0$, $v_{\mathbb{Z}} \neq 0$ і $v_{\|} = 0$. Припускаючи, що виконується умова $v_{\mathbb{Z}} \neq 0$, формула (2.13) може бути узагальнена до вигляду

$$\ln \frac{\sin \varphi}{\sin \varphi_0} + \frac{3}{8} (r_x^2 - r_{x0}^2) = \nu_{\mathbb{Z}} \int_0^\tau \frac{\cos^2 \varphi(\tau')}{\sin \varphi(\tau')} d\tau'.$$
(4.11)

На рис.4.2 наведена залежність координати наночастинки і кута намагніченості на малому часовому інтервалі.

4.3 Елементи асимптотичної теорії спрямованого транспорту наночастинок

Розглянемо спочатку динаміку наночастинок в околі початку координат (*x* = 0), коли виконуються умови [57]

$$\bar{v} = d\bar{r}_x/d\tau. \tag{4.13}$$

$$\nu_g \ll 1, \quad \nu_{\mathbb{Z}} \sim |\nu_{\parallel}| \gg 1, \quad |r_{\chi}| \ll \left(\nu_{\mathbb{Z}}^2 + \nu_{\parallel}^2\right)^{1/2} / \nu_g.$$
 (4.14)

Динаміка наночастинок характеризується двома режимами, швидким та повільним:



Рисунок 4.2 – Залежність від безрозмірного часу τ координати r_x (a) і кута намагніченості φ (b) для наночастинки в околі початку координат. Параметри моделі: $\nu_g = 0.1$, $\nu_{\mathbb{Z}} = 10^2$, $r_{x0} = 2$ і $\varphi_0 = 0.3\pi$ rad. Суцільні лінії 1 і 2 відповідають теоретичним залежностям при $\phi = \pi/2$ і $\phi = \pi/6$, відповідно. Круглі символи позначають результати, отримані шляхом чисельного розв'язання системи рівнянь (4.8) і (4.9) при $\nu_{\parallel} = 0$

$$\tau_{\rm tr} = \frac{\psi - \varphi_0}{(v_{\mathbb{Z}}^2 + v_{\parallel}^2)^{1/2} \sin(\psi - \varphi_0)}$$
(4.15)

$$\psi = \arccos \frac{\nu_{\parallel}}{(\nu_{\square}^2 + \nu_{\parallel}^2)^{1/2}}.$$
(4.16)

Введемо середню швидкість наночастинки \bar{v}_n на *n*-му періоді градієнтного магнітного за формулою

$$\bar{v}_n = \frac{1}{2\pi} [r_x (2\pi n + \tau_{\rm tr}) - r_x (2\pi n - 2\pi + \tau_{\rm tr})].$$
(4.17)

Оскільки $\tau_{\rm tr} \ll 1$, безрозмірна координата наночастинки $r_x(2\pi n + \tau_{\rm tr})$ може бути записана у вигляді

$$r_{x}(2\pi n + \tau_{\rm tr}) = \begin{cases} r_{x}(2\pi n), & n = 1, 2, \dots, N, \\ r_{x}(\tau_{\rm tr}) \approx r_{x0}, & n = 0. \end{cases}$$
(4.18)

Цей результат дозволяє нам перевизначити середню швидкість наночастинки (4.29):

$$\bar{v}_n = \frac{1}{2\pi} [r_x(2\pi n) - r_x(2\pi n - 2\pi)].$$
(4.19)

Узагальнюючи результати [12] на випадок, коли $\nu_{\parallel} \neq 0$, отримуємо

$$\bar{v}_n = r_x (2\pi n - 2\pi) \frac{2\nu_g^2 \nu_{\mathbb{P}}^2}{(\nu_{\mathbb{P}}^2 + \nu_{\parallel}^2)^{3/2}}.$$
(4.20)

$$r_{x}(2\pi n) = r_{x0} \left(1 + \frac{4\pi \nu_{g}^{2} \nu_{\mathbb{Z}}^{2}}{3(\nu_{\mathbb{Z}}^{2} + \nu_{\parallel}^{2})^{3/2}} \right)^{n}.$$
 (4.21)

Таким чином, координата наночастинки зростає з числом періодів *n* градієнтного магнітного поля у відповідності зі степеневим законом.



Рисунок 4.3 – Чисельні результати для середньої координати наночастинки (а), екстремальних значень φ_{ex} кута намагніченості (b) і середньої швидкості наночастинки (c). Параметри моделі: ν_g = 0.1, ν₂ = 10², r_{x0} = 10², φ₀ = π/2 і φ = π/2. Криві 1 і 2 відповідають функціям φ_{max} і φ_{min}, а пунктирна горизонтальна лінія відповідає граничній швидкості v_∞.

Для наночастинок, що знаходяться далеко від початку координат, умови (4.22) замінюємо на

$$\nu_g \ll 1, \quad \nu_{\mathbb{Z}} \sim |\nu_{\parallel}| \gg 1, \quad |r_x| \gtrsim \left(\nu_{\mathbb{Z}}^2 + \nu_{\parallel}^2\right)^{1/2} / \nu_g.$$
 (4.22)

У цьому випадку, згідно з рівняннями (2.8) і (2.9), $\cos \varphi$ як функція безрозмірного часу наближається до періодичної ступінчастої функції

$$\cos \varphi = \pm \begin{cases} 1 - \left(\frac{\nu_{\Xi}}{\nu_g r_{x0} + \nu_{\parallel}}\right)^2, & 0 < \tau < \pi - \phi, \\ -1 + \left(\frac{\nu_{\Xi}}{\nu_g r_{x0} - \nu_{\parallel}}\right)^2, & \pi - \phi < \tau < 2\pi - \phi, \\ 1 - \left(\frac{\nu_{\Xi}}{\nu_g r_{x0} + \nu_{\parallel}}\right)^2, & 2\pi - \phi < \tau < 2\pi. \end{cases}$$
(4.22)

Тут знаки '+' і '–' перед фігурною дужкою відповідають умовам $r_{x0} > 0$ і $r_{x0} < 0$. Для таких наночастинок їх середня швидкість на нескінченності

$$\bar{\nu}_{\infty} = \frac{2\nu_g}{3\pi} \lim_{N \to \infty} \int_{2\pi N - 2\pi}^{2\pi N} \cos\varphi(\tau) \sin(\tau + \phi) d\tau$$
(4.23)

може бути подана у вигляді [47]

$$\bar{\nu}_{\infty} = \frac{2\nu_g}{3\pi} \int_0^{2\pi} \cos\varphi(\tau) \sin(\tau + \phi) d\tau.$$
(4.24)

Для координати наночастинки в дискретні моменти часу $au_n = 2\pi n$ знаходимо

$$r_{x}(\tau_{n}) = \begin{cases} r_{x0} \left(1 + \frac{4\pi \nu_{g}^{2} \nu_{\Xi}^{2}}{3(\nu_{\Xi}^{2} + \nu_{\parallel}^{2})^{3/2}} \right)^{n}, & n = 1, \dots, N, \\ r_{x}(2\pi N) + 2\pi \bar{\nu}_{\infty}(n - N), & n = N + 1, \dots \end{cases}$$
(4.25)

На рис. 4.4 показана залежність координати наночастинки $r_x(\tau_n)$ від дискретного часу $\tau_n = 2\pi n$ для параметрів моделі, введених вище. У цьому випадку безрозмірні параметри в базових рівняннях (4.8) і (4.9) дорівнюють $\nu_g \approx 1.67 \times 10^{-1}$ і $\nu_{\mathbb{Z}} = \nu_{\parallel} \approx 5.56 \times 10^2$.

Початковий кут $\varphi_0 = \pi/3$ rad, iз (2.24) i (2.23) знаходимо $\psi = \pi/4$ rad i $\tau_{\rm tr} \approx 3.15 \times 10^{-4}$, відповідно.

$$N \approx 1.35 \times 10^4 \ln\left(\frac{1.20 \times 10^4}{|r_{x0}|}\right),$$
 (4.26)

тому максимальний час au_{\max} повинен задовольняти умові $au_{\max} \gtrsim 2\pi N$.



Рисунок 4.4 – Залежність координати наночастинки $r_x(\tau_n)$ від дискретного часу $\tau_n = 2\pi n$ (параметри моделі наведені в тексті). Теоретичні (суцільна синя крива) і чисельні (кругові червоні символи) результати якісно узгоджуються

Таким чином, запропонована асимптотична теорія спрямованого транспорту феромагнітних наночастинок у в'язкій рідині, яка основана на асимптотичних розкладах координати частинки та її середньої швидкості на малих і великих часових інтервалах. Базова система диференціальних рівнянь використовувалася для отримання та чисельної перевірки теоретичних результатів, коли явні чисельні методи стають з часом чисельно нестабільними внаслідок дрейфу наночастинок. Був запропонований найпростіший варіант асимптотичної теорії спрямованого транспорту феромагнітних наночастинок на основі асимптотичного розкладання координати частинки на відносно малих часових інтервалах. Використовуючи узгоджені асимптотичні розклади координати частинки на малих і великих часових інтервалах, визначено часову залежність координати частинки, яка якісно узгоджується з числовими результатами.

ВИСНОВКИ

1. Розроблена методика формування високоентропійних плівкових сплавів (ВЕС) шляхом пошарової або одночасної конденсації окремих компонент, яка більш енергоефективна і фінансово менш затратна порівняно з методами іонного та магнетронного розпилення, які використовуються при формуванні масивних ВЕС.

2. На феноменологічному рівні проведений теоретичний аналіз концентраційної залежності термічного коефіцієнта опору (ТКО) і коефіцієнта тензочутливості (КТ) та температури Кюрі для плівкових високоентропійних твердих розчинів на основі Fe, Ni, Co, Cu, Cr. Розрахункові результати добре узгоджуються з експериментальними. Показано, що температура Кюрі плівкових ВЕС порівняно з масивними ВЕС може зменшуватися або збільшуватися на 350-400 К, що пояснюється реалізацією доменної структури в магнітних гранулах на основі атомів Cu.

3. Вперше проведені дослідження залежності КТ багатокомпонентних плівкових матеріалів від коефіцієнта Пуасона μ_f та параметра Грюнайзена γ в області пружної ($\mu_f \leq 0,4$) та квазіупружної ($\mu_f > 0,4$) деформації. У першому випадку величина КТ мало чутливий до зміни величини γ в межах 1,5-2,5, у той же час при пластичній деформації в цьому ж інтервалі параметра Грюнайзена величина КТ зменшується від 3 до 1 одиниць. Максимальне значення КТ у плівкових сплавах, отриманих одночасною конденсацією компонент, може досягати 5 одиниць. У той же час при пошаровій конденсації окремих компонент величина КТ в області пружної деформації може досягати декількох десятків одиниць завдяки інтерфейсному розсіюванню електронів провідності.

4. Уперше на основі концепції адитивності фізичних параметрів ВЕС проаналізовані концентраційні залежності СДВП, температури Дебая і параметра решітки 4-х та 5-ти компонентних сплавів у вигляді твердих розчинів однофазного складу. Показано, що зміна параметрів решітки відбувається у відповідності з правилом Вегарда.

5. Установлено, що чутливі елементи сенсорної електроніки на основі багатокомпонентних плівкових сплавів мають переваги перед іншими нанорозмірними матеріалами, які пов'язані із їх фазовою та температурною стабільністю у широкому робочому діапазоні.

6. У рамках моделі жорстких диполів запропоновано узагальнену систему диференціальних рівнянь для кута намагніченості та координати центру наночастинки під дією змінного градієнтного та постійного однорідного магнітних полів. Уперше встановлено, що максимальна швидкість транспорту досягається, якщо паралельна компонента однорідного поля відсутня.

7. Побудована асимптотична теорія спрямованого транспорту феромагнітних наночастинок у в'язкій рідині, що виникає в результаті сумісної дії змінного градієнтного та постійного однорідного магнітних полів. Теорія базується на асимптотичних розкладах координати частинки і її середньої швидкості на малих і великих часових інтервалах з використанням узгодженого асимптотичного аналізу.

ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАННЯ

[1] J.W. Yeh, S.K. Chen, S.J. Lin, J.Y. Gan, T.S. Chin, T.T. Shun, Advanced Engineering Materials 6 (5), 299 (2004).

[2] А.Д. Погребняк, А.А. Багдасарян, И.В. Якущенко, В.М. Береснев, *Uspekhi khimii* **83**, 11, 1027 (2014).

[3] Л.А. Древаль, П.Г. Агравал, М.А. Турчанин, *Вісник Донбаської державної машинобудівної академії* **1(32)**, 58 (2014).

[4] С.А. Фирстов, В.Ф. Горбань, А.О. Андреев, *Наука та інновації* 9(5), 32 (2013).

[5] М.В. Карпець, О.С. Макаренко, О.М. Мисливченко, *Наукові вісті НТУУ* «КПІ» **2**, 46 (2014).

[6] O.V. Sobol, A.D. Pogrebnjak, I.V. Yakushchenko, *Mater. Chem. Phys.* 147(3), 1079 (2014).

[7] B. Gludovatz, A. Hohenwarter, D. Catoor, Metal Alloy. 345, 6201, 1153 (2014).

[8] Senkov O.N., Miller J.D., Miracle D.B. et. al. Accelerated exploration of multiprincipal element alloys // Nature Comm.– 2015. – DOI:10.1038/ncomms7529.

[9] Yong Zhang, Ting Ting Zuo, Zhi Tang, Michael C. Gao, Karin A. Dahmen, Peter K. Liaw, Zhao Ping Lu. Progress in Materials Science, 61, 1 (2014).

[10] Tsai M. H. Physical properties of high entropy alloys // Entropy. – 2013. –P.5338-5345.

[11] Bagdasaryan A.A., Pshyk A.V., Coy L.E., Konarski P., Misnik M., Ivashchenko

V.I., Kempinski M., Mediukh N.R., Pogrebnjak A.D., Beresnev V.M., Jurga S. Composites Part B, 46, 132 (2018).

[12] An-Chen Fan, Jian-Hong Li, Ming-Hung Tsai. *Journal of Alloys and Compound*,823, 153524 (2020).

[13] Sheng-Yun Su, Yi-Ting Fan, Yan-Jie Su, Chun-Wei Huang, Ming-Hung Tsai. *Journal of Alloys and Compound*, 851, 156909 (2021).

[14] High-Entropy Alloys. Fundamentals and Applications / Editors Michael C. Gao,Jien-Wei Yeh, Peter K.Liaw, Youg Zhang. – Springer, 2016. – 516 p.

[15] Yih-Farn Kao, Swe-Kai Chen, Ting-Jie Chen, Po-Chou Chu, Jien-Wei Yeh, Su-Jien Lin, *Journal of Alloys and Compounds* **509**, 5, 1607 (2011).

[16] R. Lizarraga, E.Holmström, L.Vitos, Phys. Rev. Materials 2, 094407 (2018).

[17] V.Chaudhary, V. Soni, B. Gwalani, R.V. Ramanujan, R. Banerjee, *Scripta Materialia* **182**, 99 (2020).

[18] J.Harris, Z.Leong, P. Gong, J.Cornide, Ch. Pughe, T. Hansen, *Journal of Physics D Applied Physics* 54 No 39, 395003 (2021).

[19] Yu.S. Bereznyak, M. Opielak, L.V. Odnodvorets, D.V. Poduremne,I.Yu. Protsenko, Yu.M. Shabelnyk, *J. Nano- Electron. Phys.* **11** No 2, 02026 (2019).

[20] Y. Bereznyak, L.V. Odnodvorets, D. Poduremne, I.Yu. Protsenko, A. Rylova, N.I. Shumakova, *Proceedings of the 2019 IEEE 9th International Conference on Nanomaterials: Applications and Properties, NAP-2019*, 2019, 9075702 (2019).

[21] I.Yu. Protsenko, L.V. Odnodvorets, M.O. Shumakova, A. Rylova, *Proceedings of* the 2020 IEEE 10th International Conference on "Nanomaterials: Applications and Properties", NAP-2020, 9309671 (2020).

[22] M.V. Vasyukhno, V.S. Klochok, N.I. Shumakova, A.K. Rylova, I.Yu. Protsenko, *Proceedings of the IEEE 11th International Conference "Nanomaterials: Applications and Properties"*, *NAP*, MTFC31-1 (2021).

[23] L.V. Odnodvorets, Yu.M. Shabelnyk, I.Yu. Protsenko, N.I. Shumakova, *J. Nano- Electron. Phys.*, **12**, No 2, 02014-1 (2020).

[24] S.I. Vorobiov, D.M. Kondrakhova, S.A. Nepijko, D.V. Poduremne,N.I. Shumakova, I.Yu. Protsenko, *J. Nano- Electron. Phys.* 8 No 3, 03026 (2016).

[25] P.D. Kim, D.I. Khalyapin, L.A. Turpanov, A.Ya. Li, *Phys. Solid. State*, **42**, 9, 1641 (2000).

[26] P. Weinberger, J. Zabloudil, R.H. Hammerling, *Phys. Rev. B.*, **67**, 054404 (2003).

[27] M. Csontos, J. Balogh, D. Kaptás, L. F. Kiss, A. Kovács, G. Mihály, *Phys. Rev. B.*, **73**, 184412, (2006).

[28] I.M. Pazukha, D.O. Shuliarenko, O.V. Pylypenko, L.V. Odnodvorets, *J. Magn. Magn. Mater.*, **485**, 89 (2019).

[29] S.I. Protsenko, L.V. Odnodvorets, I.Yu. Protsenko, *Springer Proceedings in Physics*, **156**, 345 (2015).

[30] I.Yu. Protsenko, K.V. Tyschenko, L.V. Odnodvorets, M.O. Shumakova, J.Mech. Eng. Technol., 1, 1, 34 (2013).

[31] I.V. Cheshko, Z.M. Makukha, L.V. Odnodvorets, M.O. Shumakova,D.V. Velykodnyi, I.Yu. Protsenko, *Universal J. Mater. Sci.*, 1(2), 13 (2013).

[32] I.Yu. Protsenko, L.V. Odnodvorets, M.V. Vasyukhno, V.S. Klochok, A.K.Rylova. N.I. Shumakova, J. Nano- Electron. Phys. 14 No 4, 04021 (2022).

[33] I.Yu. Protsenko, M.V. Vasyukhno, S.I. Protsenko, A.K. Rylova, K.V. Tyshchenko, *J. Nano- Electron. Phys.* 14 No 5, 05019 (2022).

[34] I.Yu. Protsenko, L.V. Odnodvorets, N.I. Shumakova, V.S. Klochok, Yu.M. Shabelnyk, Ya.V. Khyzhnya, *J. Nano- Electron. Phys.* 14 No 6, 06031 (2022).

[35] S.I. Protsenko, L.V. Odnodvorets, I.Yu. Protsenko, A.K. Rylova, D.I. Tolstikov, *Journal of Nanomaterials* 2022, 2862439 (2022).

[36] G.C. Kuczynski, *Phys. Rev.*, **94**, 1, 61 (1954).

[37] Fizika tverdoho tela. Enciklopedicheskii slovar. Vol.1- Kyiv: Naukova dumka, 1992.- 651 p. Fizika tverdoho tela. Enciklopedicheskii slovar. Vol.2- Kyiv: Naukova dumka, 1998.- 644 p.

[38] I.P. Buryk , I.M. Martynenko , L.V. Odnodvorets , Ya.V. Khyzhnya, N.I. Shumakova, *Journal of Nano- and Electronic Physics*, **14**(**1**), 01024 (2022).

[39] I.M. Pazukha, A.M. Lohvynov, O.V. Pylypenko, *Applied Physics A: Materials Science and Processing*, **128** (9), 760 (2022).

[40] *Nanoparticles and their Biomedical Applications* (Ed. By A.K. Shukla) (Singapore: Springer: 2020).

[41] P. Das, M. Colombo, D. Prosperi, Colloids Surf. B 174, 42–55 (2019).

[42] Włodarczyk A., Gorgoń S., Radoń A., Bajdak-Rusinek K., *Nanomaterials* 12, 1807(1-23) (2022).

[43] *Magnetic Cell Separation* (Eds. by M. Zborowski, J.J. Chalmers) (Amsterdam: Elsevier: 2008).

[44] Frenea-Robin M., Marchalot J., Magnetochemistry 8, 11(1-45) (2022).

[45] Ulbrich K., Holá K., Šubr V., Bakandritsos A., Tuček J., Zbořil R., *Chem. Rev.* **116**, 5338–5431 (2016).

[46] E. Kianfar, J. Supercond. Nov. Magn. 34, 1709–1735 (2021).

[47] W.T. Coffey, Yu.P. Kalmykov, J.T. Waldron, *The Langevin Equation: With Applications in Physics, Chemistry and Electrical Engineering*, 2nd *Edition* (Singapore: World Scientific: 2004).

[48] S.I. Denisov, T.V. Lyutyy, M.O. Pavlyuk, J. Phys. D: Appl. Phys. 53 405001 (2020).

[49] S.I. Denisov, B.O. Pedchenko, J. Appl. Phys. 121, 043912 (2017).

[50] S.I. Denisov, B.O. Pedchenko, O.V. Kvasnina, E.S. Denisova, J. Magn. Magn. Mater. 443 89–95 (2017).

[51] S.I. Denisov, T.V. Lyutyy, V.V. Reva, A.S. Yermolenko, *Phys. Rev. E* 97, 032608 (2018).

[52] T.V. Lyutyy, V.V. Reva, Phys. Rev. E 97, 052611 (2018).

[53] Ilg P., Evangelopoulos A.E.A.S., Phys. Rev. E 97 032610 (2018).

[54] T.V. Lyutyy, S.I. Denisov, V.V, Reva, Yu. S. Bystrik, *Phys. Rev. E* 92, 042312 (2015).

[55] Yu.L Raikher., V.I.Stepanov, Phys. Rev. E 83 021401 (2011).

[56] D.V. Berkov, L.Yu. Iskakova, A.Yu. Zubarev., Phys. Rev. E 79 021407 (2009).

[57] S.I.Denisov, T.V.Lyutyy, A.T. Liutyi, J. Phys. D: Appl. Phys. 55 045001 (2022).

[58] S.I. Denisov, M.M. Moskalenko, T.V. Lyutyy, M.Yu. Baryba, *J. Nano- Electron. Phys.* **13**, 06027 (2021).