УДК 539.21

Семенько М.П.[1], д. ф.-м. н.,проф.

Кластерні особливості слабкої локалізації в аморфних сплавах на основі заліза

Температурні залежності електричного опору легованих аморфних сплавів на основі заліза проаналізовано в моделі, що пов'язує ефекти слабкої локалізації з кластерними структурами, утворених деякими легуючими компонентами. Така модель враховує мікронеоднорідну структуру аморфних сплавів. Наведено оцінки та аргументи на користь такої моделі.

Ключові слова: *аморфні сплави, електроопір, слабка локалізація, кластер.*

[1]Київський національний університет імені Тараса Шевченка,03680, м. Київ, пр-т. Глушкова 4д, e-mail: smp@ univ.kiev.ua

M.P. Semen'ko[1], Dr. Sci., Prof.

Cluster peculiarities of weak localisation in iron-based amorphous alloys

Temperature dependencies of the electric resistance for doped iron-based amorphous alloys were analyzed within the model that weak localizations effects arise due to cluster structures. constructed some dopants. Such model takes into account the micro-inhomogeneous structure of amorphous alloys. The estimations and arguments have been adduced to support of such model.

Key Words: *amorphous alloys, electric resistance, weak localization, cluster.*

[1]Taras Shevchenko National University of Kyiv, 03680, Kyiv, Glushkova st., 4d, e-mail: smp@ univ.kiev.ua

Статтю представив член-кор. НАН України, д.ф.-м.н., проф. Макара В.А.

Як відомо [1,2], атомна будова аморфних металевих сплавів (АМС) є не статистично-однорідною, а складається з областей та кластерів з різним топологічним та композиційним ближнім порядком. На жаль застосування такої концепції атомної структури АМС практично не використовується при аналізі електричних властивостей. Тому використання таких особливостей внутрішньої будови АМС, зокрема, використання полікластерної моделі [2], досить важлива задача для встановлення основних механізмів розсіювання, що визначають їх електричні властивості.

Аналіз температурних залежностей електроопору $R(T)$ АМС на основі заліза показує, що їх характер визначається типом легуючої домішки [3]. В [4] показано, що наявність додаткового внеску, пропорційного $T^{1/2}$, може бути пояснено в рамках моделі початкової локалізації [5], в основу якої покладено скейлінговий розгляд квантових поправок до електроопору, зокрема механізму слабкої локалізації (СЛ) [6]. Хоча саме поняття скейлінгу і передбачає деякий масштабний фактор [6], але така концепція розглядає систему статистично-однорідною, що, як було відмічено вище, лише наближено може бути застосовано до АМС. Проведемо аналіз залежностей $R(T)$, зокрема наявність додаткового внеску від СЛ, з урахуванням кластерних особливостей внутрішньої будови АМС.

Температурна залежність $R(T)$ досліджувалась в інтервалі 77-950 К. Деталі експерименту можна знайти в [3,4]. Об'єктами досліджень були аморфні сплави на основі Fe. Особливістю залежностей $R(T)$ більшості із них є лінійний характер при високих T (від 300-450 К і до області кристалізації). Однак характер низькотемпературної поведінки суттєво визначається типом домішки. Електронний критерій виникнення внеску від СЛ в залежності від типу легуючої домішки розглянуто в [4]. Додатковий внесок ΔR, пропорційний $T^{1/2}$, був одержаний відніманням з експериментальних даних лінійної залежності, екстрапольованої до більш низьких T.

На рис. 1 зображена залежність Δr від $T^{1/2}$ для деяких АМС на основі Fe, легованих домішками, що призводять до виникнення саме такого внеску.

Як видно з рис.1, цю залежність можна описати рівнянням:

$$\Delta r = \varepsilon_0 - \varepsilon_{1/2} T^{1/2}, \qquad (1)$$

© М.П. Семенько, 2013

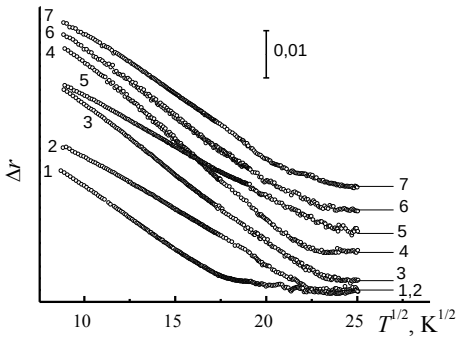

Рис. 1. Залежність Δ*r* від $T^{1/2}$ для АМС: $Fe_{70}Mo_{10}Si_6B_{14}$ (1), $Fe_{80}Cr_5B_{15}$ (2), $Fe_{75}Cr_5B_{20}$ (3), $Fe_{80}Mn_5B_{15}$ (4), $Fe_{75}Mo_5B_{20}$ (5), $Fe_{78}Ni_1Mo_3Si_2B_{16}$ (6), $Fe_{75.5}Ni_{3.5}Mo_3Si_2B_{16}$ (7). (Ціна поділки вздовж осі Δ*r* нанесена на графіку. Горизонтальні лінії – „нулі" відповідних залежностей).

Легко показати, що в моделі початкової локалізації температурна залежність електроопору може бути описана виразом [7]:

$$R(T) = a_0 + \alpha T - \varepsilon_{1/2} T^{1/2}. \qquad (2)$$

Безпосередньо вираз (1) можна трактувати з різних точок зору. Він може розглядатися як простою складовою виразу (2), тобто складовою з якої виділено доданок αT і деяку частину температурно-незалежного внеску. Саме це і передбачає модель [7].

В той же час при неоднорідній будові АМС можна припустити, що різні внески в температурну залежність $R(T)$ можуть виникати і внаслідок наявності різних областей з різним характером провідності. В такому випадку можна використати різні моделі електроопору, що враховують таку мікронеоднорідну атомну будову. Найпростішою з них є модель, коли сумарний питомий електроопір пропорційний об'ємному внеску питомих електроопорів кожної з областей. Припустимо, що додатковий внесок в Δ*R* виникає лише в деяких кластерних структурах з об'ємним вмістом *v*. Тоді сумарний питомий електроопір ρ може бути описаний виразом:

$$\rho = \rho_{Ф3}(1-v) + \Delta\rho_{СЛ} v, \qquad (3)$$

де $\rho_{ф3}=\rho_0+\alpha T$ – внесок в ρ від основної матричної структури. Його можна ототожнювати з механізмом Фабера-Займана. Внесок $\Delta\rho_{СЛ}=\rho^*-eT^{1/2}$ – це наслідок СЛ, що проявляється в кластерних структурах лише певного типу.

Для нормованої температурної залежності $r(T)=R(T)/R_{300}=\rho/\rho_{300}$ (R_{300}, ρ_{300} – електроопір або питомий електроопір АМС при T=300К) можемо записати:

$$r(T) = \rho_{Ф300}/\rho_{300}(1-v) + \alpha/\rho_{300}(1-v) + \\ + (\rho^*/\rho_{300})v - e/\rho_{300} v T^{1/2}. \qquad (4)$$

Звідси, в рівнянні (1):

$$\varepsilon_0 = \rho^*/\rho_{300} v, \qquad (5)$$

а

$$\varepsilon_{1/2} = e/\rho_{300} v, \qquad (6)$$

При сильному розсіюванні, відповідно до нерівності Йоффе-Регеля [6], мінімальне значення безрозмірного параметра $k_F l$ дорівнює 1. Внаслідок цього існує максимальне значення ρ^*, якого може досягти розупорядкований матеріал, зберігаючи рух електрона у вигляді плоскої хвилі [6]. Експериментальне величина граничного значення ρ^* складає 200÷300 мкОм·см. Тоді з рівняння (5) наближено можна оцінити об'ємний вміст кластерів.

В таблиці наведені значення ρ_{300} та апроксимаційних параметрів ε_0 та $\varepsilon_{1/2}$ ряду АМС на основі Fe. В цій же таблиці міститься оцінка *v* з використанням значення ρ^*=200 мкОм·см. Розраховане значення *v* в цілому правильно відображає зміни вмісту легуючого компоненту. Зокрема, у АМС Fe-Si-B, виготовлених з технічних лігатур, значення *v* вище ніж у АМС виготовлених з чистих компонентів. Такий фактор знаходить добре пояснення якщо припустити, що СЛ виникає не тільки в кластерних областях від легуючих компонент, але й кластерах, що формуються навколо технічних домішок.

З рівняння (6) та оцінки *v* можна одержати параметри, що характеризують локалізаційний внесок. Дійсно, температурна залежність провідності, що обумовлює внесок, пропорційний $T^{1/2}$, описується виразом [5]:

$$\Delta\sigma_{СЛ}(T) \cong \frac{1}{\pi^2}\frac{e^2}{\hbar}\frac{1}{L_i(T)}, \qquad (7)$$

де $L_i(T)$ – дифузна довжина втрати фази (в деяких випадках L_i розглядається як довжина локалізації). Якщо довжини вільного пробігу пружного розсіювання l_e, а непружного – l_i, то $L_i^2=(1/2)l_e l_i$. Якщо вважати, що $l_e\approx$0,3 нм (типова

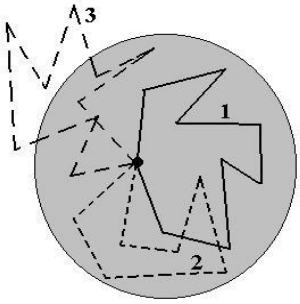

Рис. 2. Інтерференційні пари дифузійних траєкторій, вздовж яких розповсюджуються електронні хвилі. За відсутності кластера інтерференція має місце для всіх трьох траєкторій, а при наявності кластера (зафарбована область) інтерферують лише хвилі, що розповсюджуються лише по траєкторіям 1 та 2.

міжатомна віддаль для АМС), а $l_i \sim T^{-1}$ (для досліджуваного інтервалу T), то $L_i=\lambda_i T^{-1/2}$. Можна показати, що:

$$\lambda_i \approx \frac{e^2}{\hbar\pi^2}\frac{\nu\rho^{*2}}{\rho_{300}\varepsilon_{1/2}}. \qquad (8)$$

Оцінка величини L_i та l_i при температурі T=100 К дана в таблиці. Як видно, l_i виявилось на порядок меншим за l_e, що не сумісно з умовою виникнення СЛ ($l_i>>l_e$ [6]).

Однак в такій оцінці не враховано розмірні фактори кластерних структур. Зазвичай кластерна структура в аморфних матеріалах має розмір порядку декількох міжатомних віддалей, що співрозмірно з довжиною вільного пробігу електронів. На рис. 2 зображено кластерну область, в межах якої відбувається дифузійний рух електрона. Розглянемо замкнуті траєкторії, по яких електрон може повернутися у вихідну точку r=0 з протилежними напрямками руху. Серед них траєкторії 1 та 2 знаходиться в межах кластера, а траєкторія 3 – виходить за його межі.

Якщо не брати до уваги кластерні особливості, то слід враховувати всі траєкторії, довжина яких буде меншою за значення l_i, тобто, траєкторії 1, 2 та 3. Максимальний час, через який електрон, повернувшись у вихідну точку, ще прийматиме участь в інтерференції, це час збою фази τ_i, а мінімальний – це час пружного розсіювання τ [6].

Однак, траєкторія 3 виходить за межі кластера. Якщо енергія електрона ε_j зберігається після кожного акту пружного розсіювання в межах кластера, то, слід припустити, що після виходу електрона за його межі матиме збій фази. Тому, при інтегруванні верхня межа τ_i хоча і залишиться, однак, слід врахувати лише ті траєкторії, що знаходяться в межах кластера. Внаслідок цього, дифузна довжина L_i буде меншою, тобто входитиме у вираз (7) з певним множником.

Оцінимо цей множник. При відсутності кластера максимальна віддаленість електрона від точки r=0 без зміни фази складатиме $l_i/2$ (множник 1/2 враховує, що електрон повинен ще й повернутися у вихідну точку). Можна прийняти, що максимальна віддаленість електрона буде відповідати характерному розміру a, що приходиться на один такий кластер. При малій концентрації легуючого компонента, а отже і кластерів, це цілком макроскопічна величина. В такому випадку $a>>l_i/2$ і при інтегруванні по t автоматично виключаються всі траєкторії для яких $t>\tau_i$. При наявності кластера слід врахувати, що така максимальна віддаленість буде обмежена віддалю $R_к=(3V_к/4\pi)^{1/3}$, де $R_к$ – радіус кластера, а $V_к$ – його об'єм. Відношення $R_к/a$, очевидно і буде визначати коефіцієнт, на який змінюється дифузна довжина. Отже, матимемо $R_к/a \approx \alpha(V_к/V)^{1/3}=\alpha\nu_к^{1/3}$, де $\nu_к$ –частка об'єму, яку займають кластери, а α - деякий коефіцієнт (α<1). Зважаючи на це, в рівнянні (7) слід змінити L_i на $\alpha\nu^{1/3}L_i$, рівняння (8) набуде вигляду:

$$\lambda^*_i \approx \frac{e^2}{\hbar\pi^2}\frac{\nu^{2/3}\rho^{*2}}{\alpha\rho_{300}e_{1/2}}, \qquad (9)$$

Розраховані значення l_i^* при T=100 К для α=0,5 (порядок відношення $(3V_к/4\pi)^{1/3}$) наведені в таблиці. Як видно значення l_i^* значно перевищуватимуть значення l_e=0,3 нм, прийнятої за довжину пружного розсіювання, і вони мають порядок розміру кластерних структур в АМС (декілька міжатомних віддалей [8]).

Кластерний розгляд ефектів СЛ дає можливість пояснити цілий ряд особливостей на залежностях $R(T)$. До них можна використати підходи, що розглянуті в [4], для пояснення мінімуму електроопору на таких залежностях, різні критерії зникнення локалізаційного внеску. Крім цього, різний ступінь прояву локалізаційних ефектів, а отже і різне положення мінімуму на залежностях $\rho(T)$, зумовлено не тільки значеннями параметрів пружного розсіювання, а і різною концентрацією кластерів (легуючої

Таблиця 1

Питомий електроопір ρ, апроксимаційні коефіцієнти b_0, α, ε_0, $\varepsilon_{1/2}$ та оцінка об'ємного вмісту локалізаційних областей *v* та довжин непружного вільного пробігу l_i та l_i^* при температурі T=100 К для АМС на основі заліза. (АМС з індексом $^{(T)}$ виготовлені з технічних лігатур).

АМС	ρ, мкОм·см	b_0	α, 10^{-4} K^{-1}	ε_0, 10^{-2}	$\varepsilon_{1/2}$, 10^{-3} $K^{-1/2}$	*v*, %	l_i нм	l_i^* нм
$Fe_{80}Mn_5B_{15}$	162	0,9328	1,71	7.45	3,37	6,0	0,15	1,94
$Fe_{80}Cr_5B_{15}$	140	0,9402	1,56	5.63	2,51	3,9	0,15	2,56
$Fe_{80}Ti_5B_{15}$	163	0,9020	2,86	5.96	2,73	4,9	0,14	2,09
$Fe_{77,5}Ni_{3,5}Mo_1Si_2B_{16}$	159	0,9531	1,50	2,07	1,15	1,6	0,10	2,90
$Fe_{78}Ni_1Mo_3Si_2B_{16}$	150	0,9446	1,41	6,23	2,82	4,7	0,15	2,24
$Fe_{75,5}Ni_{3,5}Mo_3Si_2B_{16}$	165	0,9431	1,45	5,82	2,57	4,8	0,15	2,24
$Fe_{75,5}Ni_{3,5}Mo_3Si_2B_{16}{}^T$	160	0,9162	1,83	10,4	4,33	8,3	0,17	1,80
$Fe_{75}Ni_4Mo_3Si_2B_{16}$	148	0,9525	1,30	4,84	2,29	3,6	0,13	2,40
$Fe_{75}Ni_4Mo_3Si_2B_{16}{}^T$	172	0,9434	1,42	7,19	3,33	6,2	0,14	1,80

домішки). Але основним, очевидно, слід вважати наступне.

Ефекти СЛ досить чутливі до магнітного поля [6]. І при досить великих магнітних полях ці ефекти руйнуються (втрачається фазова когерентність). Тому досить важко пояснити їх походження в АМС на основі Fe через їх феромагнітну природу. Проте, нелінійні особливості на залежностях $R(T)$ лише при легуванні базового АМС елементами у яких магнітний момент або взагалі відсутній (Mo), або характеризується антиферомагнітною взаємодією з сусідніми атомами (Cr, Mn), дає підставу вважати, що внутрішні магнітні поля в кластерних структурах, утворених цими атомами, досить малі, а отже основне протиріччя знімається.

Очевидно, точнішу оцінку можна одержати лише при більш послідовному теоретичному розгляді цього питання. Однак, навіть тоді оцінка буде досить грубою, оскільки ρ^*, яке ми приймали рівним 200 мкОм·см, строго не визначене і змінюється в межах 200÷300 мкОм·см, а його теоретична оцінка навіть дає величину 1000 мкОм·см [6].

Таким чином, в роботі проаналізовано особливості температурної поведінки електроопору АМС на основі заліза і зроблено їх аналіз з точки зору ефектів СЛ в кластерних структурах, утворених певними легуючими атомами. Наведено оцінки та аргументи на користь такої моделі.

Список використаних джерел

1. *Amorphous metallic alloys*. ed. by V.V. Nemoshkalenko // Kiev: Naukova Dumka, 1987. – 248 p. (in Russian).
2. *Bakai A. S.* Polycluster amorphous solids // Moscow : Energoatomizdat, 1987. – 192 p. (in Russian).
3. *Semen'ko M.P.* Doping peculiarities on the electro-transport properties of iron-based amorphous alloys // Metallofiz. Noveishie Tekknol. – 2008. – **30**, №7 – P. 933-944. (in Ukrainian).
4. *Zakharenko M.I., Kalnysh T.V., Semen'ko M. P.* Interrelation between the Electrical Resistance of Amorphous Alloys and Their Atomic and Electronic Structures// Phys. Met. Metallogr.– 2012. – **113**, No. 8. –P.762–770.
5. *Howson M. A.* Incipient localisation and electron-electron correlation effects in metallic glass alloys // J. Phys. F: Met. Phys. – 1984. –**14**. – P.L25–L30.
6. *Gantmakher V.F.* Electrons in disordered environments // Moscow : FIZMATLIT, 2005. – 232 p. (in Russian).
7. *Zakharenko M.I., Kalnysh T.V., Orlenko M.V. Semen'ko M. P.* Weak localization in FINEMENT amorphous alloys // Metallofiz. Noveishie Tekknol. – 2012. – **34**, № 11. – C.1477-1486. (in Ukrainian).
8. *Glezer A.M.* Amorphous and nanocrystal structures: affinities, differences, reciprocal transitions // Russin Chem. Journal. – 2002. – **XLVI**, №5. – C.57-63. (in Russian).

Надійшла до редколегії 03.04.2013