

VILNIAUS UNIVERSITETAS  
FIZIKOS FAKULTETAS  
TAIKOMOSIOS ELEKTRODINAMIKOS IR TELEKOMUNIKACIJŲ INSTITUTAS

Deividas Žiūraitis

KOMPOZITŲ SU MWCNT IR Ni@C NANODALELĖMIS ŽEMADAŽNIO TRIUKŠMO  
CHARAKTERISTIKOS IR KRŪVIO PERNEŠIMO MECHANIZMAI

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Elektronikos ir telekomunikacijų technologijos studijų programa

|                       |                            |
|-----------------------|----------------------------|
| Studentas             | Deividas Žiūraitis         |
| Leista ginti          | 2022-05-25                 |
| Darbo vadovas         | dr. Marina Tretjak         |
| Recenzentas           | doc. Edvardas Kazakevičius |
| Instituto direktorius | prof. Robertas Grigalaitis |

Vilnius 2022

# Turinys

|  |    |
|--|----|
| Įvadas.....  | 3  |
| 1. Teorinė apžvalga.....                               | 5  |
| 1.1. Anglies dariniai .....                            | 5  |
| 1.1.1. Ni@C nanodalelės.....                           | 5  |
| 1.1.2. Anglies nanovamzdeliai .....                    | 6  |
| 1.2. Kompozitinės medžiagos ir jų gamyba .....         | 7  |
| 1.3 Krūvio pernešimo mechanizmai .....                 | 10 |
| 1.3.1. Kintamo ilgio šuolių laidumas.....              | 10 |
| 1.3.2. Tuneliavimas .....                              | 13 |
| 1.4. Triukšmų rūšys.....                               | 14 |
| 1.4.1. Šiluminis triukšmas .....                       | 14 |
| 1.4.2. Generacinis-rekombinacinis triukšmas(g-r) ..... | 15 |
| 1.4.3. <i>I/f</i> triukšmas .....                      | 16 |
| 1.4.4. Impulsinis triukšmas (RTN).....                 | 17 |
| 2. Tyrimo metodai .....                                | 19 |
| 2.1 Matavimo metodai .....                             | 19 |
| 2.2 Bandinių gaminimas ir paruošimas.....              | 21 |
| 3. Rezultatai ir jų aptarimas .....                    | 22 |
| 4. Išvados.....  | 31 |
| 5. Literatūra.....                                     | 33 |

## Darbe naudojamos santrumpos

**CNT** – anglies nanovamzdelis (angl. carbon nanotube);

**MWCNT** – daugiasienis anglies nanovamzdelis (angl. multi-walled carbon nanotube);

**RTN** – impulsinis triukšmas (angl. random telegraph noise);

**SWCNT** – vienasieniai anglies nanovamzdeliai (angl. single-walled carbon nanotube);

**VRH** – kintamo ilgio šuolių laidumas (angl. variable range hopping);

**Ni@C** – nikelis padengtas anglimi (angl. Nickel-carbon);

**% vol** – kiekis procentais visame tūryje

## Įvadas

Šių laikų technologijos labai sparčiai plečiasi. Tai yra viena iš pagrindinių priežasčių, dėl kurių atliekama vis daugiau tyrimų su įvairiomis medžiagomis turinčiomis tiks joms būdingas savybes bei charakteristikas. Viena iš tokių medžiagų yra anglis. Jos įvairių kompozitų fizikiniai parametrai smarkiai skiriasi nuo kitų medžiagų. Todėl, anglimi, yra atsiradęs toks didelis susidomėjimas.

Labai didelį dėmesį patraukė polimeriniai kompozitai su anglies nanodalelėmis. Anglies nanovamzdeliai (CNT) yra išskirtini dėl savo fizikinių ir struktūrinių savybių ir turi daug perspektyvų naujų medžiagų gaminyje [1,2]. Elektronikos prietaisai su anglies nanovamzdeliais turi daug naudingų savybių, tokių kaip: aukštas mechaninis stabilumas, UV spindulių ir garų adsorbcija, žema darbinė temperatūra, balistinė krūvio pernaša, didelė reakcijos sparta, geras atsparumas ugniai ir ilgas tarnavimo laikas. Šios savybės teikia daug naudos siekiant pagerinti jau egzistuojančių ir naujai sukurtų elektronikos prietaisų, kaip nanometrinių lauko tranzistorių [1,4], nanometrinių bioelektronikos prietaisų, mikrometrinių induktorių [5], nanometrinių terahercinių įtaisų bei įvairūs jutikliai [2], charakteristikas. Elektronikos gamyboje visada stengiamasi sumažinti prietaisų matmenis, t.y. sumažinti jų dydį. Vis dėl to, prietaisuose, kaip pvz., lauko tranzistorius, sumažinus matmenis, silicio tranzistoriuose atsiranda problemų dėl sutrumpėjusio kanalo. Labai gera atmaina yra CNT (kurių skersmuo yra apie 1nm) pagrindu sukurti tranzistoriai, kurių pagalba galima sumažinti užtūros ilgį net iki 10nm [6].

Viena iš daugelio medžiagų, kurios yra susijusios su anglimi yra anglimi padengtos nikelio nano dalelės Ni@C. Nikelio (Ni) nanodalelės ir anglimi padengtos Ni nanodalelės (Ni@C)

pasizymi superparamagnetinėmis arba feromagnetinėmis savybėmis, kurios dėl magnetinių nuostolių daro jas daug žadančias projektuojant mikrobangas absorbuojančius prietaisus [3,9]. Kompozitai su Ni@C ir MWCNT (daugiasieniais anglies nanovamzdeliais), kurių Ni@C kiekis viršija perkoliacijos slenkstį, yra ištirti labai mažai [3]. Problema aktuali ir dėl to, kad kompozitų, kuriuose yra beveik sferinių dalelių, elektros perkoliacijos slenkstis gali būti labai žemas, iš esmės mažesnis, nei buvo numatyta išimties tūrio teorijoje, todėl šie kompozitai gali pakeisti CNT pagrindu pagamintus kompozitus įvairiuose elektronikos prietaisuose [3,10].

Tokioje mokslinio susidomėjimo srityje žemo dažnio triukšmo spektroskopija gal būti pritaikyta kaip informacinis metodas tiriant krūvininkų laidumo mechanizmus naujose medžiagose [14]. Yra žinoma, kad triukšmas yra labai jautrus bet kokiems pokyčiams medžiagoje. Nepaisant to, CNT ir Ni nanodalelių pagrindu pagamintų medžiagų triukšmo tyrimai yra reti [7,15-17].  $1/f$  triukšmas yra svarbus veiksnys vertinant anglies nanovamzdelių potencialą elektronikos ir jutiklių srityse. Mokslininkų atlikti tyrimai teigia, kad medžiagose su anglies nanovamzdeliais ir Ni nanodalelėmis yra pastebimos  $1/f$  fliuktuacijos [7,15]. Šių kompozitų triukšmas kyla dėl nanovamzdelių priemaišų arba konstrukcijoje esančių defektų. [15] Parodyta, kad  $1/f$  triukšmas yra labai didelis plėvelėse su mažu CNT tankiu ir kad triukšmo lygis mažėja, kai CNT tankis didėja (t. y. medžiaga tampa homogeniškesnė). CNT kompozituose galima išskirti du mikroskopinius krūvininkų transportavimo mechanizmus: pernešimą išilgai pačių nanovamzdelių ir pernešimą tarp nanovamzdelių [15]. Didelė  $1/f$  triukšmo vertė, pastebėta CNT kompozituose, taip pat gali būti siejama su tuo, kad elektros srovė nanovamzdeliuose yra perduodama per paviršiaus atomus ir ją lengvai gali sutrikdyti vietiniai krūvio svyravimai [16]. Taip pat reikėtų atsižvelgti į rišamosios kompozito matricos indėlį į  $1/f$  triukšmą [17,18]. Iš viso  $1/f$  triukšmo lygis CNT pagrindu pagamintuose kompozituose labai priklauso nuo įrenginio matmenų, nanovamzdelių išlygiavimo laipsnio ir plėvelės varžos [16,18].

Tad šio darbo tikslas - ištirti žemadažnio triukšmo charakteristikas kompozituose bei krūvio pernešimo mechanizmus, kurių rišamoji matrica yra epoksidinė derva, o užpildas – įvairaus tūrio Ni@C ir daugiasieniai anglies nanovamzdeliai (MWCNT - Multiwalled Carbon nanotubes), diapazone nuo 10 Hz iki 20kHz ir temperatūros intervale nuo 75 K iki 380 K.

# 1. Teorinė apžvalga

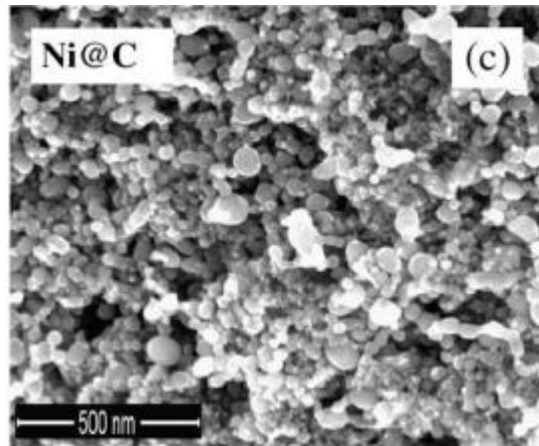
## 1.1. Anglies dariniai

Polimero-anglies kompozitai yra heterofazinė sistema, susidedanti iš dviejų ar daugiau komponentų ir išlaikanti kiekvieno iš jų individualumą. Kaip minėta įvade, tokių medžiagų savybės lemia kompozitą sudarančių komponentų savybės, taip pat jų tarpusavio sąveikos lygis. Čia pateikta SWCNT, MWCNT ir Ni@C struktūros bei kai kurios charakteristikos ir gamybos būdai. Taip pat nagrinėjami bendrieji polimero-anglies kompozitų gamybos principai. Pateikiama krūvio pernešimo (šuoliavimo, tuneliavimo) mechanizmai, kurie pastebėti tiriamosiose medžiagose ir aptarti Rezultatų skyriuje. Taip pat ir žemo dažnio triukšmų tipai, kurie yra pagrindas labai jautriam tiriamų mėginių krūvio perdavimo mechanizmų analizės metodui [13].

### 1.1.1. Ni@C nanodalelės

Nanodalelės susilaukė didelio mokslininkų bendruomenės dėmesio dėl jų dydžio. Anglimi padengti metalai pirmą kartą buvo susintetinti 1993 m. [8] ir pastaraisiais metais jiems buvo skiriamas didelis dėmesys dėl plataus pritaikymo, įskaitant didelio tankio magnetinių duomenų saugojimą, magnetoskysčius, magnetinio rezonanso vaizdavimą ir biomedicinos metodus [9]. Nanometro dydžio magnetinių dalelių inkapsuliavimas į anglies kapsules yra ypač svarbus, nes jis apsaugo metalą nuo priešiškos cheminės aplinkos ir padeda slopinti arti esančius reiškinius [9]. Anglimi dengtas nikelis (Ni@C) yra nauja medžiaga, susijusi su fulerenais. Tokia medžiaga, apsaugota anglies sluoksniu, yra gana stabili ir gali įveikti galimą poveikį dėl nanodalelių aglomeracijos [11].

Anglimi dengtos nikelio nanodalelės arba nanomilteliai yra juodos sferinės didelio paviršiaus ploto dalelės. Paprastai jos yra 10–40 nm dydžio. Ni@C struktūra yra pavaizduota 1.1 pav.



1.1 pav. Ni@C medžiagos SEM paveikslas [9]

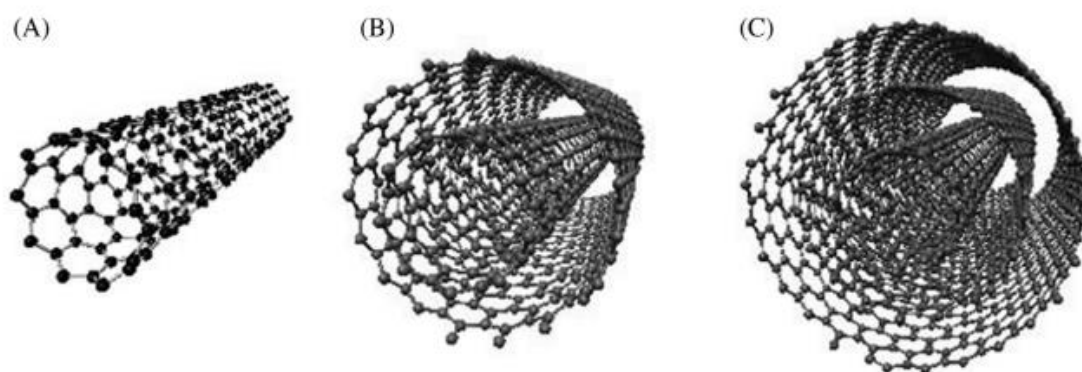
Ni@C pasižymi specifinėmis savybėmis, tokiomis kaip magnetizmas, šiluminė varža, didelis paviršiaus plotas, geresnis reaktyvumas, didelis standumas, puslaidininkinis laidumas ir didelis cheminis aktyvumas, kurį galima pritaikyti labai įvairiai, įskaitant baterijas, kietuosius lydinius, katalizatorius ir kt. Dėl ypatingų nikelio nanodalelių optinių savybių šiose dalelėse galima pastebėti kvantinį efektą. Nikelio nanodalelės taip pat gali būti itin didelio grynumo, izoliuotos ir dispersinės formos. Metalines nikelio nanodaleles gana sunku susintetinti, nes jos lengvai oksiduojasi [11]. Anglimi dengtų nanodalelių sintezei naudojami keli metodai, tokie kaip lankinis išlydis (angl. arc-discharge), anglies pagrindu pagamintų medžiagų ir metalo turinčių miltelių mišinių atkaitinimas aukštoje temperatūroje ir aukšto slėgio cheminio nusodinimo garais (HPCVD) metodas [12].

#### 1.1.2. Anglies nanovamzdeliai

Nuo tada, kai Iijima 1991 m. atrado CNT [35], skirtingos CNT formos, tokios kaip vienasieniai anglies nanovamzdeliai (SWCNT) ir daugiasieniai anglies nanovamzdeliai (MWCNT), sulaukė tarptautinio mokslinio susidomėjimo visame pasaulyje dėl savo unikalaus mechaninio derinio (Jungo modulis  $\sim 1$  TPa ir tempiamasis stipris iki 60 GPa), elektrinių (maksimalus elektros laidumas esant 300 K,  $\sim 10^6$  S/m SWCNT ir  $>10^5$  S/m MWCNT) ir šiluminių savybių (maksimalus šilumos laidumas 6600 W/mK individualiam SWCNT ir  $>3000$  W/mK individualiam MWCNT), taip pat mažo tankio, lankstumo, šilumino stabilumo iki 2000- 2400 C<sup>0</sup> argono atmosferoje arba vakuume ir didelio kraštinių santykio (skersmuo 3,3 angstromų ir ilgis 6 mm) [36-38].

CNT gamyboje buvo išbandyta daugybė metodų, įskaitant lankinį išlydį (angl. arc discharge) ir lazerinį nusodinimą (angl. laser deposition). Paprastai CNT auginimas ant metalinio

katalizatoriaus, pavyzdžiui, geležies, nikelio ar kobalto, naudojamas cheminio garų nusodinimo (angl. CVD Chemical Vapor deposition) proceso metu. Priklausomai nuo sintezės procedūros, gaunami atviro arba uždaro tipo CNT. Apskritai jų cheminės sintezės parametrai yra nemenkas iššūkis gaminant CNT, nes CNT matmenys (skersmuo ir ilgis), chiraliskumas (zigzagas, fotelis ar chiralinis) ir sienelių skaičius turėtų būti kontroliuojami [25]. SWCNT galima konceptualizuoti suvyniojus grafeno lakštą į besiūlį kelių nanometrų skersmens cilindrą. SWCNT galai uždenkti pusiau fulereno rutuliais. MWCNT susideda iš kelių SWCNT koaksialinio mazgo „rusiškos lėlės“ struktūroje, atskirtų vienas nuo kito per apytiksliai 0,34 nm, o tai yra šiek tiek daugiau nei atstumas tarp sluoksnių grafite. Kita nanovamzdelio forma yra dvigubas anglies nanovamzdelis (DWCNT), kurį sudaro tik du grafeno sluoksniai. 1.2 pav. parodytos įvairios CNT formos [36,37].



1.2 pav. (A) vienasienis (SWCNT), (B) dvisienis (DWCNT) ir (C) daugiasienis anglies nanovamzdeliai (MWCNT) [36].

Vidinės CNT sienelės yra lygios ir hidrofobinės. Vandens molekulių, einančių per nanovamzdelio vidų, judėjimą galima paaiškinti vandens grandinių (1D vielos) balistiniu judėjimu dėl stipraus vandenilio ryšio tarp vandens molekulių ir minimalios sąveikos su CNT vidine sienele [40].

Puikios CNT savybės suteikia įdomų potencialą naujai polimerinių kompozicinių medžiagų klasei, kuri pakeis tradicinius užpildus [41]. Lyginant su įprastais užpildais, CNT gali pagerinti mechaninį stiprumą, šiluminį ir elektrinį našumą.

## 1.2. Kompozitinės medžiagos ir jų gamyba

Kompozitinės medžiagos paprastai skirstomos į du klasifikavimo lygius:

Pirmasis klasifikavimo lygis paprastai atliekamas atsižvelgiant į matricos sudedamąją dalį. Pagrindinės kompozitų klasės yra organinės matricos kompozitai (OMC), metalo matricos kompozitai (MMC) ir keraminės matricos kompozitai (CMC). Paprastai manoma, kad terminas organinės matricos kompozitas apima dvi kompozitų klases, būtent polimerinės matricos kompozitus (PMC) ir anglies matricos kompozitus, paprastai vadinamus anglies-anglies kompozitais [42].

Antrasis klasifikavimo lygis susijęs su rišamąja forma – pluoštu sustiprinti kompozitai, laminariniai kompozitai ir kietųjų dalelių kompozitai. Pluoštu sustiprintus kompozitus (FRP) galima dar suskirstyti į tuos, kuriuose yra nepertraukiamo arba ištisinio pluošto [42].

Pluoštu sustiprinti kompozitai sudaryti iš pluoštų, įterptų į matricinę medžiagą. Toks kompozitas laikomas nepertraukiamu pluoštu arba trumpo pluošto kompozitu, jei jo savybės skiriasi priklausomai nuo pluošto ilgio. Pluoštai yra mažo skersmens ir stumiami ašine kryptimi lengvai lankstosi, nors turi labai geras tamprumo savybes. Šie pluoštai turi būti sustiprinti, kad atskiri pluoštai nesulinktų [42].

Laminariniai kompozitai sudaryti iš medžiagų sluoksnių, laikomų matricos pagalba [42].

Kietųjų dalelių kompozitai yra sudaryti iš dalelių, paskirstytų arba įterptų į matricos kūną. Dalelės gali būti plokštelių arba miltelių pavidalo [42].

Yra daugybė kompozitinių komponentų gamybos būdų, pavyzdžiui, liejimas įpurškimu, tačiau daugelis buvo sukurti siekiant patenkinti specifinius projektavimo ar gamybos iššūkius. Todėl konkretaus metodo pasirinkimas priklausys nuo medžiagų, dalies konstrukcijos ir galutinio naudojimo ar pritaikymo. Kompozitiniai gamybos procesai apima tam tikrą liejimą, kad būtų suformuota derva ir sustiprinimas, t.y. nesuformuotam dervos/pluošto deriniui būtų suteikta forma prieš kietėjimą ir jo metu, reikalingas formavimo įrankis [42].

Apskritai polimerinių kompozitų gamybos technologija susideda iš šių etapų [13]:

- armuojančio užpildo paruošimas;
- polimerinio rišiklio paruošimas;
- matricos apjungimas su armuojančiu užpildu;



- detalės formavimas;
- rišklio sukietėjimas;
- detalės kokybės kontrolė.

Šiuo metu yra daug būdų, kaip gaminti dalis iš polimerinių kompozitinių medžiagų. Pagrindiniai formavimo būdai yra šie:

- kontaktinis liejimas;
- liejimas su elastine diafragma;
- slėginis liejimas;
- presavimas formomis;
- vyniojimas;
- pultruzija;
- ruošinių ir padėkliukų išankstinis formavimas.

Polimero užpildymas anglies dalelėmis pagerina medžiagos mechanines charakteristikas (stangrumą, atsparumą tempimui), padidina elektros laidumą, padidina šilumos laidumą, atsparumą karščiui, kompozitui suteikia naujų funkcinių savybių.

Tačiau tiek vienalyčio užpildo pasiskirstymo matricos tūryje sudėtingumas, tiek stabilios lipnios jungties užtikrinimas yra rimtos nanokompozitų paruošimo problemos. Šios problemos kyla dėl van der Waalso užpildo dalelių sąveikos tarpusavyje ir jų polinkio formuoti netvarkingus agregatus. Vienas iš šios problemos sprendimo būdų yra užpildo dalelių paviršiaus funkcionalizavimas, kuris užpildo paviršiaus daleles sukuria labiau sąveikai su matricos molekulėmis nei užpildo dalelių sąveikai tarpusavyje ir taip pagerinamos mechaninės medžiagų savybės. Yra būdų, kurie nefunkcionalizuoja užpildo dalelių paviršiaus. Kitas būdas yra naudoti tinkamus tirpiklius ir tada juos išgarinti iš matricos [13].

Žinomas polimerinio kompozito su orientuota anglies nanovamzdelių matrica, susidedančios iš polimerinės matricos, sustiprintos orientuota anglies nanovamzdelių matrica, gamybos būdas. Centrifuguojant substratas dedamas statmenai centrifugos sukimosi plokštumai, o

vertikaliai orientuotas ant substrato užaugintų CNT masyvas naudojamas kaip užpildas, po to nanokompozito sluoksnis termiškai apdorojamas esant temperatūrai, kuri nėra aukštesnė už polimerinės matricos ardymo temperatūrą [13].

Kitas polimero gamybos būdas - anglies užpildo kompozitas ant substrato. Tai apima polimero ištirpinimą pirmame tirpiklyje 90 °C temperatūroje ir CNT apdorojimą ultragarsu antrajame tirpiklyje. Tada ištirpęs polimeras sumaišomas su CNT praskiestais tirpalu ir gautas mišinys ultragarsu apdorojamas kintamajame magnetiniame lauke, kad CNT paskirstytų per visą matricos ilgį. Po to atliekamas kompozito uždėjimas ant substrato ir jo terminis apdorojimas, esant pastoviam magnetiniam laukui [13,43]. Taikant aukščiau pateiktą metodą, CNT dispersija atliekama naudojant ultragarsą, todėl pagerėja nanomedžiagos dispersija.

### 1.3 Krūvio pernešimo mechanizmai

Kompozito elektrinės varžos priklausomybę nuo užpildo koncentracijos galima suskirstyti į tris skirtingus režimus:

- Esant labai mažai užpildo koncentracijai, kai atstumai tarp užpildo dalelių yra labai dideli, o laidumas apibūdina rišiklio matricos charakteristikas.
- Kai užpildo koncentracija yra arti perkoliacijos slenksčio, užpildo dalelės pradeda formuoti laidų tinklą ir pastebimas staigus varžos sumažėjimas.
- Esant didelei užpildo koncentracijai, laidumas susideda iš užpildo dalelių elektrinio laidumo charakteristikų, kadangi tokiu atveju laidūs tinklai pasiskirsto visoje matricoje.

Šiuose režimuose yra dviejų tipų elektriniai ryšiai: kai užpildo dalelės liečiasi viena su kita, laikoma, kad tarpdalelinė varža tarp jų yra lygi nuliui, o kai užpildo dalelės yra atskirtos polimero matrica, tada susidaro didelė tarpdalelinė varža [13].

Kompozituose, kur anglies dalelės yra užpildas, o matrica yra dielektrinė, iš esmės yra du laidumo tipai: kintamo ilgio šuolių laidumas, kai krūvis juda viduje laidžiose užpildo dalelėse ir krūvininkų tuneliavimas per dielektrinę matricą tarp užpildo dalelių [19,20].

#### 1.3.1. Kintamo ilgio šuolių laidumas

Kintamo ilgio šuolių (VRH (Variable range hopping)) krūvio perdavimo mechanizmą iš pradžių pasiūlė Mott ir tai yra krūvininkų perkėlimo su fononais procesas [21-23]. Šis modelis

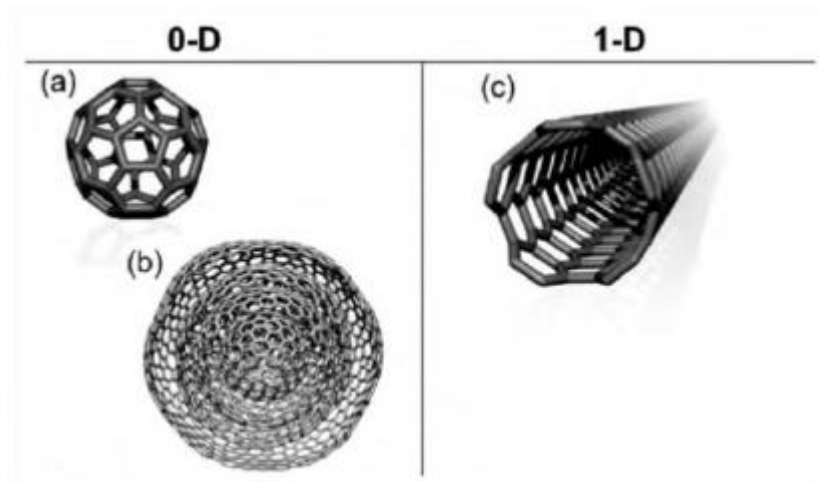
gali tinkamai apibūdinti nuolatinės srovės laidumo priklausomybę nuo temperatūros ir vidinį krūvio perdavimo mechanizmą amorfinėse ir netvarkingose medžiagose. Šis modelis apibūdina krūvio judėjimą tarp gretimų lokalizuotų energijos būsenų, kurios yra skirtingos arba kurios yra atskirtos erdvės, bet turinčios panašią energiją. Remiantis Mott teorija [22,24], krūvio perėjimo iš vienos lokalizuotos būsenos į kitą greitį galima apibūdinti taip:

$$V_{ij} = v_0 \exp(-2ar_{ij}) \exp\left(-\frac{\Delta E_{ij}}{k_B T}\right) \quad (1.1)$$

kur  $i$  ir  $j$  žymi pradinę ir galutinę būseną,  $v_0$  yra konstanta, kuri parodo perėjimo bandymų skaičių per laiko vienetą [24] ir priklauso nuo krūvininkų sąveikos su fononais stiprumo.  $\alpha^{-1}$  yra lokalizuotos bangos funkcijos slopinimo ilgis.  $r_{ij}$  yra šuolio distancija.  $\Delta E_{ij}$  yra energijos skirtumas tarp dviejų būsenų.  $k_B$  yra Boltzmanno konstanta.  $T$  yra temperatūra. Tačiau krūvininkai ne visada peršoka į artimiausią lokalizuotą būseną. Kai temperatūra yra labai žema, kad  $k_B T$  yra maža, palyginti su  $\Delta E_{ij}$ , tada (1.1) lygties antroji eksponentė yra artėjanti į nulį ir krūvininkai peršoka į energetiškai palankias būsenas. VRH modelis taikomas skirtingiems krūvininkams, jei naudojama tinkama bangų funkcija. Neatsižvelgiant į krūvininkų sąveiką, laidumo priklausomybę nuo temperatūros esant pastoviai srovei galima apibūdinti formule:

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left[-\left(\frac{T_0}{T}\right)^\gamma\right] \quad (1.2)$$

kur  $\sigma_0$  laikomas laidumo ribine verte esant begalinei temperatūrai, t.y. šis parametras praktiškai nepriklauso nuo temperatūros.  $T_0$  yra netvarkos matas, t.y. temperatūra, kuri lemia termiškai aktyvuotą šuoliavimą tarp lokalizuotų būsenų esant skirtingoms energijoms [26]. Indeksas  $\gamma$  yra susijęs su užpildo dalelių matmenimis.  $\gamma = \frac{1}{1+d}$ , kur  $d$  yra matmuo. Skirtingų anglies alotropų matmenys parodyti 1.3 pav.



1.3 pav. Įvairių tipų sp<sup>2</sup> tipo hibridizuotų anglies nanostruktūrų, turinčių skirtingus matmenis, molekuliniai modeliai, 0D ir 1D: a) C<sub>60</sub>: Buckminsterfullerenas; b) lizdiniai milžiniški fullerenai arba grafitiniai svogūnai; c) anglies nanovamzdelis [27].

Pagal VRH modelį parametras  $\sigma_0$  yra lokalizacijos ilgio funkcija ir priklauso nuo elektrono ir fonono sąveikos [21]. Šį parametą galima apibūdinti taip [28]:

$$\sigma_0 = \left[ \frac{9N_{E_F}}{8\alpha\pi k_B T} \right]^{1/2} e^2 v_0 \quad (1.3)$$

kur  $N_{E_F}$  yra būsenų tankis Fermio lygyje,  $e$  yra elektronų krūvis,  $v_0$  (jau prieš tai minėtas) šokinėjimo dažnis, kuris gali būti laikomas optiniu fonono dažniu, kuris įgyja  $10^{13} \text{ s}^{-1}$  reikšmę.

$T_0$  – yra būsenos tankio funkcija ir gali būti apibūdinta kaip [28]:

$$T_0 = \frac{\lambda \alpha^3}{k_B N_{E_F}} \quad (1.4)$$

kur  $\lambda$  yra bematė konstanta, priklausanti nuo nagrinėjamo fononinio proceso (daugelio arba kelių fononų proceso) [29].

Temperatūros diapazonuose, kur triukšmo intensyvumas didėja didėjant varžai, krūvio perdavimą gerai apibūdina trimačių sistemų perkoliacijos modelis. Normalizuotas triukšmo spektrinis tankis klasikiniam krūvio perdavimui gerai aprašytas formule:

$$\frac{S_U}{U^2} = S_0 R^w \quad (1.5)$$

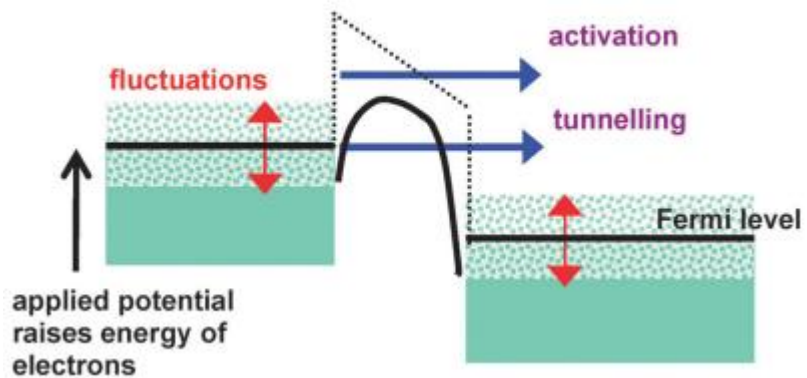
kur  $S_U$  yra triukšmo spektrinis tankis,  $S_0$  yra varžos svyravimų amplitudė,  $R$  yra imties varža ir  $w$  yra kritinė eksponentė, išreikšta kaip gardelės prasiskverbimo kritinių eksponenčių funkcija ir gali svyruoti nuo 0,87 iki 3,2 įvairiuose atsitiktiniuose erdvės modeliuose [30].

### 1.3.2. Tuneliavimas

Dielektrinės matricos ir anglies užpildo kompozituose perkoliacijos teorijoje pastebimas paradoksas. Remiantis klasikine perkoliacijos teorija, perkoliacijos slenkstis yra užpildo dalelių geometrinis ryšys, dėl kurio smarkiai padidėja elektros laidumas. Tačiau stebint laidumą polimero-laidininko kompozituose, staigus laidumo padidėjimo slenkstis nepastebimas, o šio reiškinio priežastis yra ta, kad polimero kompozitų sistemose laidžios dalelės gali būti elektra sujungtos su geometrine jungtimi per tuneliavimo mechanizmus. Tunelinis laidumas yra nepertraukiama funkcija [13,31-33], bet taip pat gerai sutampa su klasikine perkoliacijos teorija.

Todėl polimero-anglies kompozitai turėtų būti laikomi sistemomis, susidedančiomis iš regionų, atskirtų tam tikromis potencialiomis kliūtimis, kuriose krūvininkai yra delokalizuoti didesniais atstumais nei tarpatominiai.

Tokiai sistemai elektrinės varžos priklausomybės nuo temperatūros gali būti apibūdintos naudojant tunelinio laidumo, kurį sukelia šiluminiai svyravimai, modelį. Scheminis šio elektroninio transportavimo mechanizmo vaizdas parodytas 1.4 pav.



1.4 pav. Scheminis tunelinio laidumo dėl šiluminių svyravimų pavaizdavimas [13].

Tuneliavimas vyksta per ploną barjerą tarp metalinių regionų su delokalizuotais krūvininkais. Šiluminiai svyravimai padidina krūvio transportavimą. Esant pakankamai aukštai temperatūrai, transportavimas vyksta dėl terminio krūvininkų aktyvavimo.

Šis nuolatinės srovės laidumo priklausomybės nuo temperatūros modelis atvaizduojamas taip [31]:

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{T_1}{T + T_0}\right) \quad (1.6)$$

kur  $\sigma_0$  yra funkcija, kuri silpnai priklauso nuo temperatūros.  $T_1$  yra temperatūra, atitinkanti potencialo barjero, per kurį tuneliuoja krūvininkas, energiją.  $T_0$  yra temperatūra, virš kurios šiluminiai svyravimai tampa reikšmingi. Parametrai  $T_1$  ir  $T_0$  gali būti apibūdinti taip:

$$T_1 = \frac{128\varepsilon_0AV_0^2}{k_B e^2 w} \quad (1.7)$$

$$T_2 = \frac{2hT_1}{\pi w \sqrt{2mV_0}} \quad (1.8)$$

kur  $\varepsilon_0$  yra vakuomo laidumas,  $A$  yra sandūros suformuotas talpos plotas,  $V_0$  yra potencinio barjero aukštis,  $w$  yra atstumas tarp dalelių (tarpo plotis),  $h$  yra Planko konstanta,  $m$  yra elektronų masė.

Taip pat triukšmo elgesį galima apibūdinti dviejų lygių tuneliavimo sistemos (TLTS, angl. Two-level tunneling system) svyravimo modeliu. Šiuo atveju triukšmo spektrinį tankį galima apibūdinti formule [39]:

$$\frac{S_U}{U^2} = \frac{AT}{R^2} \quad (1.9)$$

kur  $A$  yra proporcingumo koeficientas, atsirandantis dėl spontaniškų perėjimų tarp TLTS lygmenų.

## 1.4. Triukšmų rūšys

Triukšmas yra atsitiktiniai makroskopinių dydžių nuokrypiai nuo jų vidurkio. Triukšmas atsiranda visose medžiagose ir jų dariniuose: elektroninėse, biologinėse ir kitose. Taip pat elektrinis triukšmas yra labai jautri priemonė, suteikianti informaciją apie fizikinius procesus ir leidžianti išsiaiškinti laidumo mechanizmus kompozitinėse medžiagose [13,45-48]. Kartu su varžos charakteristikų ir srovės-įtampos analize, žemo dažnio triukšmo matavimai leidžia gauti vertingos informacijos apie laidumo ir krūvininkų pamešimo mechanizmus naujose medžiagose [13,44,49].

### 1.4.1. Šiluminis triukšmas

Elektrinės šiluminio pobūdžio fluktuacijos teoriškai buvo aprašytos prieš Brauno judėjimo teorijos atsiradimą. J. Johnson eksperimentiškai jas pastebėjo 1927 m. Įjungus rezistorių, stiprintuvo išėjime buvo stebima atsitiktinai kintanti įtampa, kas ir yra triukšmas [50]. J. Johnson taip pat pastebėjo, kad šiluminio triukšmo intensyvumas priklauso tik temperatūros ir varžos dydžio.

Vienais metais vėliau, šis fenomenas buvo teoriškai aprašytas H.Naikvisto [50]. Jis paaiškino teoriją apie šiluminio triukšmo galios spektrinio tankio priklausomybę nuo dažnio. H.

Naikvistas atliko formulių išvedimus, apibūdinančius šią priklausomybę nuo dažnio, kai dažnis tenkina nelygybę  $f < \frac{kT}{h} \approx 6 * 10^{12} \text{ Hz}$ ;  $h$  – Planko konstanta [52,53]. Šiuo atveju srovės ir įtampos šiluminių svyravimų spektriniai tankiai priklauso nuo elemento varžos, o ne nuo dažnio ir yra proporciški temperatūrai. H. Naikvistas aprašė juos šiomis formulėmis [50]:

$$S_U = 4kTR, \quad (1.10)$$

$$S_I = 4kT \frac{1}{R}, \quad (1.11)$$

$S_U$  ir  $S_I$  – įtampos ir srovės fliktuacijų spektriniai tankiai,  $k$  – Boltzmann konstanta,  $T$  – absoliučioji temperatūra,  $R$  – elemento varža.

Šiluminis triukšmas įprastai naudojamas, kad sukalibruoti matavimo aparatūrą, taip pat naudojamas temperatūros matavimui žemose temperatūrose ir šiluminių kontaktų kokybės vertinimuose [52,53,54].

#### 1.4.2. Generacinis-rekombinacinis triukšmas(g-r)

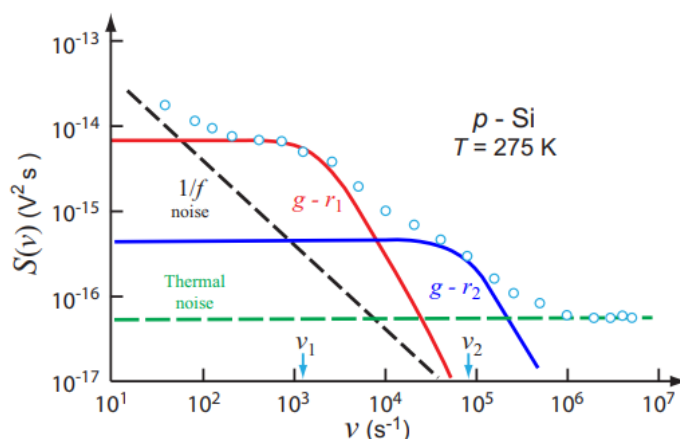
Didžiąją dalį srovės fliktuacijų mechanizmų galima paaiškinti varžos (t.y. krūvininkų kiekio) fliktuacijomis. Atvirkštinis vyksmas krūvininko generacijai puslaidininkyje – krūvininko išnykimas (pagavimas arba rekombinacija). Kai sistema yra pusiausvyroje, generacijos ir rekombinacijos spartos yra tokios pačios, o abu šie procesai vyksta atsitiktinai. Tad laisvųjų krūvininkų skaičius  $N$  yra fliktuojantis parametras. Bandiniu tekančios nuolatinės srovės  $I_0$  fliktuacijos sukelia krūvininkų skaičiaus  $\Delta N$  fliktuacijas [52]:

$$\frac{\Delta N}{N_0} = \frac{\Delta I}{I_0} \quad (1.12)$$

kur  $N_0$  yra vidutinis laisvųjų krūvininkų skaičius bandinyje. Jei krūvininkai yra nepriklausomi ir tenkina Puasono tikimybių skirstinį:  $\langle \Delta N^2 \rangle = N_0$ , tada srovės fliktuacijų spektrinis tankis turi Lorencio pavidalo spektrą ir yra aprašomas šia formule [52]:

$$S_I = 4 \frac{I_0^2}{N_0} \frac{\tau_0}{1 + (f\tau_0)^2} \quad (1.13)$$

kur  $\tau_0$  yra vidutinė krūvininkų relaksacijos trukmė.



1.5 Pav. Grafinis g-r triukšmo modelis[56].

1.5 paveiksle yra pavaizduotas generacinio – rekombinacinio triukšmo pavyzdinis spektras Si prietaise. Šis triukšmas yra neišvengiamas puslaidininkiniuose junginiuose, kur gardelės defektai sudaro didžiausią problemą [52-54].

#### 1.4.3. $1/f$ triukšmas

Šis triukšmas pasireiškia praktiškai visur: dielektrikuose, puslaidininkiuose, metaluose, vakuuminiuose įtaisuose ir puslaidininkiniuose įtaisuose. Įprastai didelį  $1/f$  triukšmą turi dariniai, kuriuose yra daug defektų. Tad pagal  $1/f$  triukšmo vertę galima nuspėti apie prietaiso ar medžiagos kokybės lygį [51,54]. Šio triukšmo spektro pobūdis įprastai yra  $f^{-\alpha}$ ; kur  $\alpha$  dažniausiai vyrauja  $0,7 < \alpha < 1,5$ . Kaip ir  $g-r$  triukšme, pusiausvyros sąlygomis srovės fliuktuacijos yra nulemtos laidininko varžos, ir galima leisti prielaidą, kad krūvininkų judėjimas yra visiškai atsitiktinis. Todėl tikėtina, jog  $1/f$  triukšmo vertė bus atvirkščiai proporcinga suminiam judriųjų krūvininkų skaičiui  $N$  bandinyje [52,54]. Bendrai  $1/f$  triukšmą galima aprašyti šia formule:

$$S_U = \frac{A}{f^\alpha} \quad (1.14)$$

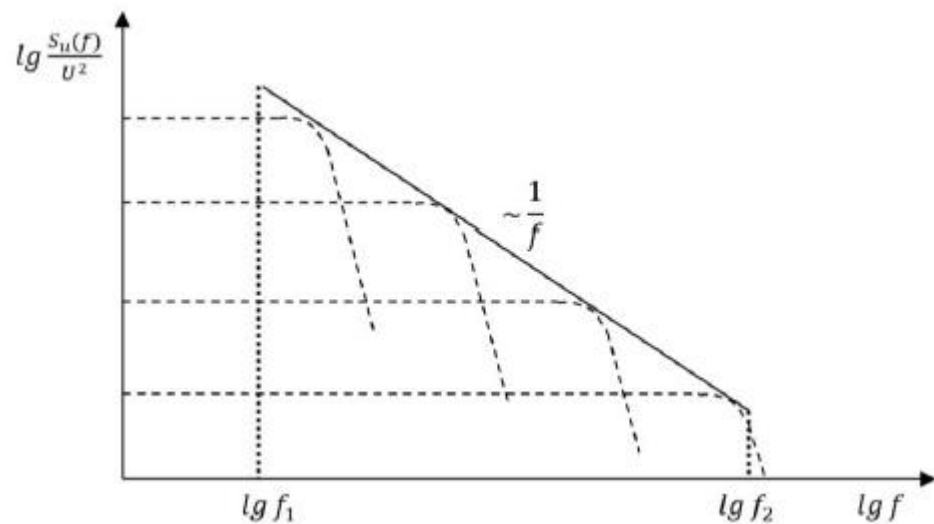
kur  $A$  yra proporcingumo koeficientas,  $\alpha$  yra eksponentė, kuri įprastai yra  $0,9 < \alpha < 1,2$ , bet yra atvejų kai yra  $0,7 < \alpha < 1,5$  [13,51,52].

Yra nemažai teorijų bandančių paaiškinti  $1/f$  triukšmo atsiradimo kilmę ir tokį spektro pobūdį, vis dėlto puslaidininkiniuose prietaisuose pagrinde priimta aiškinti kaip daugybės generacinių – rekombinacinių triukšmų superpozicija:



$$\frac{S_U}{U^2} = \sum_l \frac{\alpha_l \tau_l}{1 + \bar{\omega}^2 \tau_l^2} \quad (1.15)$$

kur  $\alpha_l$  yra dimensijos neturintis parametras, kuris apibūdina triukšmo, kurio relaksacijos trukmė  $\tau_l$ , intensyvumą.  $1/f$  triukšmas yra gaunamas modeliuojant relaksacijos spektrus pagal (1.15) formulę, pasirenkant relaksacijos laiko pasiskirstymo tikimybės tankį.  $1/f$  triukšmo grafinis modelis yra pavaizduotas 1.6 paveiksle [51,52].

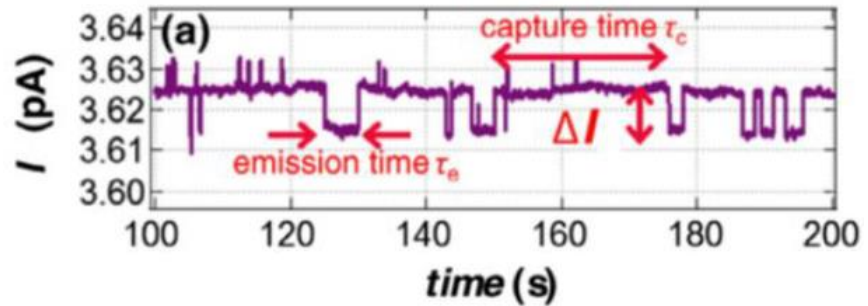


1.6 Pav. Grafinis  $1/f$  triukšmo modelis iš generacinių - rekombinacinių spektrų superpozicijos [13].

#### 1.4.4. Impulsinis triukšmas (RTN)

Impulsinis triukšmas (angl. Random Telegraph Signal Noise (RTN)) pasireiškia  $pn$  sandūrose, kai per sandūrą teka srovė. Šio triukšmo pobūdis dažniau atsiranda mažų matmenų bandiniuose. Jis gali atsirasti dėl gardelės dislokacijų, potencialinio barjero nepastovumo, sunkiųjų metalų priemaišų, taip pat ir dėl krūvininkų tuneliavimo, ypač prie žemų temperatūrų [13]. Kaip  $1/f$  bei generacinis-rekombinacinis triukšmai, impulsinis triukšmas taipogi gali būti paašškintas kaip laidumo arba varžos fliktuacijos [52-54]. RTN didžiausią įtaką daro temperatūra ir srovė, kuri teka

per puslaidinikinį prietaisą [13]. Impulsinis triukšmas yra pavaizduotas 1.7 pav. Impulsinis triukšmas gali būti kelių lygių, t.y. gali būti kelių telegrafų signalų superpozicija [55].



1.7 Pav. Impulsinis triukšmas (RTN)  $n$ FET tranzitoriuje [13]

Polimerų su anglimi kompozituose, RTN yra dažnai pastebimas, kai yra matuojamos temperatūrinės priklausomybės. Vis dėlto, krūvio judėjimas per krūvininkų pagavimo centrus dažniausiai rodo  $1/f$  triukšmo spektrą.

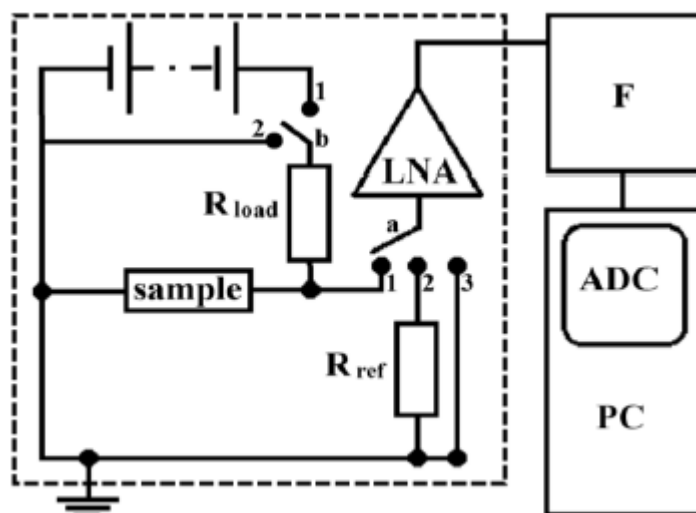
## 2. Tyrimo metodai

### 2.1 Matavimo metodai

Šiame darbe matuojamos varžos charakteristikos ir žemo dažnio triukšmas kambario temperatūroje, skirtingomis nuolatinės srovės vertėmis, taip pat skirtingomis temperatūromis. Matavimų temperatūrų diapazonas nuo 75 K iki 380 K. Tiriamas mėginys pritvirtintas laikiklyje, kurio kontaktai turi gerą laidumą, ir patalpintas į šilumą izoliuojančią kamerą. Temperatūros matavimams aušinimo metu kamera pastoviai apipilama skystu azotu, o šildymui panaudota kameroje įmontuota šildymo ritė. Temperatūra matuojama termistoriaus pagalba, kuris taip pat patalpintas kameros viduje kartu su tiriamuoju bandiniu.

Varžinės charakteristikos kambario temperatūroj išmatuotos „Keysight Technologies B1500A“ analizatoriumi, srovė apribota iki 0,1 A, kad būtų išvengta išmatuoto mėginio pramušimo. Elektrinės varžos priklausomybė nuo temperatūros, esant pastoviai srovei, matuojama lygiagrečiai su triukšmu.

Visi triukšmų matavimai atlikti ekranuotoje laboratorijoje, kuri leido išvengti išorinės aplinkos parazitinės elektromagnetinės spinduliuotės. Šiame darbe matavimų dažnių diapazonas nuo 10 Hz iki 20 kHz. Elektrinio triukšmo matavimo schema parodyta 2.1 pav.



2.1 pav. Triukšmo matavimo sistemos schema: bandinys (sample), mažo triukšmo stiprintuvas (LNA), filtrų sistema (F), analoginis-skaitmeninis keitiklis (ADC), asmeninis kompiuteris (PC), etaloninė varža ( $R_{ref}$ ), apkrovos varža ( $R_{load}$ ) [13]

Triukšmo matavimas atliktas leidžiant nuolatinę srovę per tiriamą bandinį. Dėl fizinių procesų vykstančių tiriamajame bandinyje stebimos elektrinės fliktuacijos, t.y. triukšmas. Gautas triukšmo signalas sustiprintas su mažatriukšmiu stiprintuvu. Tada analoginis signalas praleidžiamas per filtrus ir konvertuojamas į skaitmeninį signalą naudojant analoginį-skaitmeninį keitiklį (ADC (National Instruments PCI-6115)). Spektrinis tankis gautas atliekant greitąją Furjė transformaciją. Ir galutinis spektras yra 100–150 realizacijų vidurkis.

Lyginant su jau žinoma etaloninio rezistoriaus šiluminio triukšmo verte, apskaičiuota absoliutinė elektrinio triukšmo spektrinio tankio vertė. Skirtumas tarp apkrovos rezistoriaus varžos ir išmatuoto bandinio varžos turi būti bent 10 kartų didesnis pastovios srovės režimui išlaikyti arba 10 kartų mažesnis pastovios įtampos režimui išlaikyti. Apkrovos varžos vertė apskaičiuota, priklausomai nuo konkretaus tiriamo bandinio.

Atliekant tyrimą su kompozitinėmis medžiagomis, kur rišamoji matrica yra dielektrikas, o užpildas – laidininkas, mėginio varža turi didelę priklausomybę nuo užpildo koncentracijos. Todėl naudojami du elektrinio triukšmo spektrinio tankio absoliučios vertės skaičiavimo būdai [13]:

- Kai bandinys turi mažą varžą (t.y. kai parinkta apkrovos varža yra 10 kartų didesnė už bandinio varžą), absoliutinė elektrinių fliktuacijų įtampos spektrinio tankio vertė apskaičiuojama pagal formulę:

$$S_U = \frac{\overline{U^2} - \overline{U_s^2}}{\overline{U_{ref}^2} - \overline{U_s^2}} 4k_B T R_{ref} \quad (2.1)$$

kur  $\overline{U^2}$ ,  $\overline{U_{ref}^2}$  ir  $\overline{U_s^2}$  yra, atitinkamai, tiriamojo bandinio (įskaitant matavimo sistemos triukšmą), etaloninio rezistoriaus (taip pat įskaitant sistemos triukšmą) ir matavimo sistemos fliktuacijų dispersijos siauroje dažnių juostoje,  $T$  – etaloninės varžos temperatūra,  $R_{ref}$  yra etaloninė varžos vertė ir  $k_B$  yra Boltzmano konstanta [13].

- Kai bandinys turi didelę varžą (t.y. neišeina surasti didesnės nei 10 kartų apkrovos varžos), tada absoliutinė elektrinių fliktuacijų įtampos spektrinio tankio vertė apskaičiuojama pagal formulę:

$$S_U = \frac{\overline{U^2} - \overline{U_{load}^2}}{\overline{U_{load}^2} - \overline{U_s^2}} 4k_B T R_{load} \left( \frac{R_{load} + R}{R_{load}} \right)^2 \quad (2.2)$$

Kur  $\overline{U_{load}^2}$  yra apkrovos rezistoriaus įtampos fliktuacijų dispersija (įskaitant ir matavimo sistemos triukšmą),  $R_{load}$  yra apkrovos rezistoriaus varža,  $T$  – apkrovos rezistoriaus temperatūra, o  $R$  – tiriamojo bandinio varža matavimo temperatūroje [13].

## 2.2 Bandinių gaminimas ir paruošimas

Kompozitams gaminti, kaip polimero matrica, naudojama komercinė epoksidinė derva Epikote 828, kurios tankis 1,16 g/cm<sup>3</sup>. Kaip užpildai naudojami daugiasieniai anglies nanovamzdeliai ir Ni nanodalelės, padengtos anglimi (Ni@C). MWCNT, išaugintų cheminiu garų nusodinimo metodu [3], vidutinis išorinis skersmuo 20–40 nm, ilgis – 0,5–200 μm, o tankis – 2,0 g/cm<sup>3</sup>. Kompozito gamybai naudojamos 20 nm storio Ni nanodalelės, kurių tankis yra 8,9 g/cm<sup>3</sup> [3]. Ni nanodalelės padengtos keliais glaudžiai sutankintais kelių nanometrų storio anglies sluoksniais [3].

Hibridiniai (Ni@C/MWCNTs/epoksidiniai) kompozitai, paruošti pagal standartinę užpildo dalelių dispergavimo epoksidinėje matricoje procedūrą [3,57]. Hibridinių Ni@C/MWCNT/epoksidinių kompozitų gamybos procedūra sudėtinga ir daug laiko reikalaujanti, nes kiekvienas užpildas atskirai paskirstytas izopropanolyje ultragarsu. Epoksidinė derva pridėta į MWCNT / izopropanolio suspensiją ir gautas mišinys pakartotinai apdorojamas ultragarsu 1 valandą. Naudojant fiksuotą 5 g epoksidinės dervos masę kiekvienam mėginiui, abiejų užpildų tūrinės koncentracijos įvertintos pagal masės koncentracijas, atsižvelgiant į aukščiau minėtą medžiagos tankį. Paskutinis 1 valandos ultragarsinis apdorojimas atliktas sumaišius Ni@C / izopropanolio ir MWCNT / epoksido / izopropanolio suspensijas. Paskutiniai etapai izopropanolio išgarinimas ir kietėjimas. Kompozitų serijų kietėjimo procesas atliktas trietilentramino (TETA) kietikliu 24 valandas kambario temperatūroje ir 2 valandas 100 °C orkaitėje. Hibridinių kompozitų gamybos technikoje kietiklis dedamas santykiu 1:10 epoksidinės dervos atžvilgiu [3].

Aukščiau aprašyti metodai leido gauti hibridinius Ni@C/MWCNT/epoksidinius kompozitus, kurių fiksuota MWCNT koncentracija yra 0,09 vol % (šiek tiek mažesnė už prasiskverbimo būseną atitinkamuose vienerūšiuose kompozituose [57]) ir įvairaus Ni@C kiekio 0,2, 0,6, 1 ir 5 vol% [3]. Bandiniai gauti iš Vilniaus Universiteto Taikomosios elektrodinamikos ir telekomunikacijų instituto.

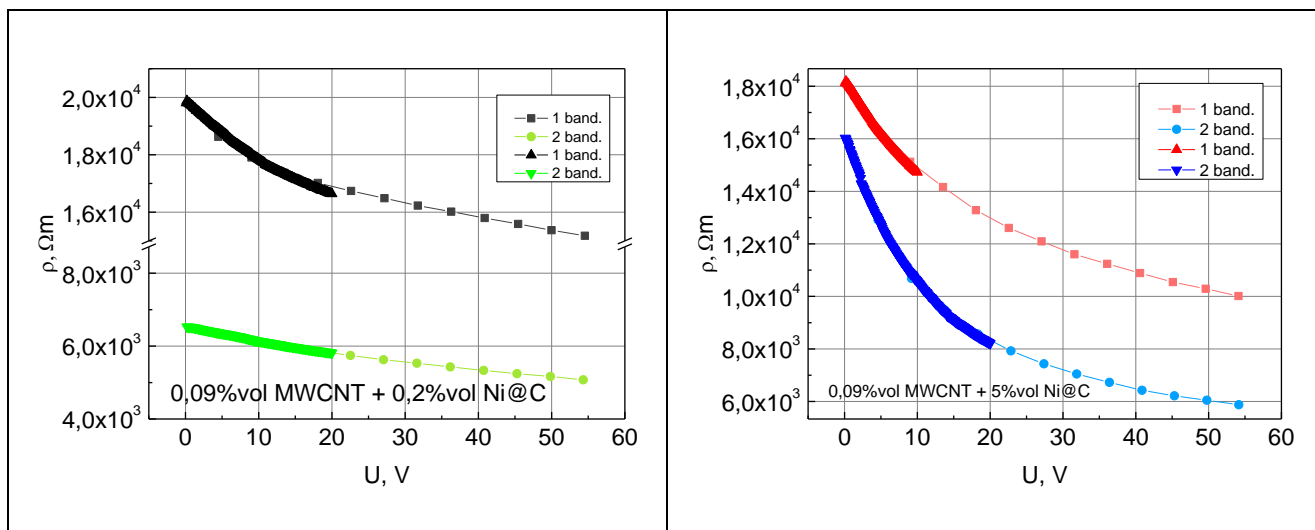
### 3. Rezultatai ir jų aptarimas

Šio darbo metu matuoti dviejų skirtingų rūšių bandiniai su vienodu MWCNT kiekiu, kuris yra 0,09% vol ir skirtingais Ni@C kiekiais 0,2%vol, 5%vol. Visi matuoti bandiniai yra pateikti bandinių sąrašo lentelėje.

#### Bandinių sąrašas

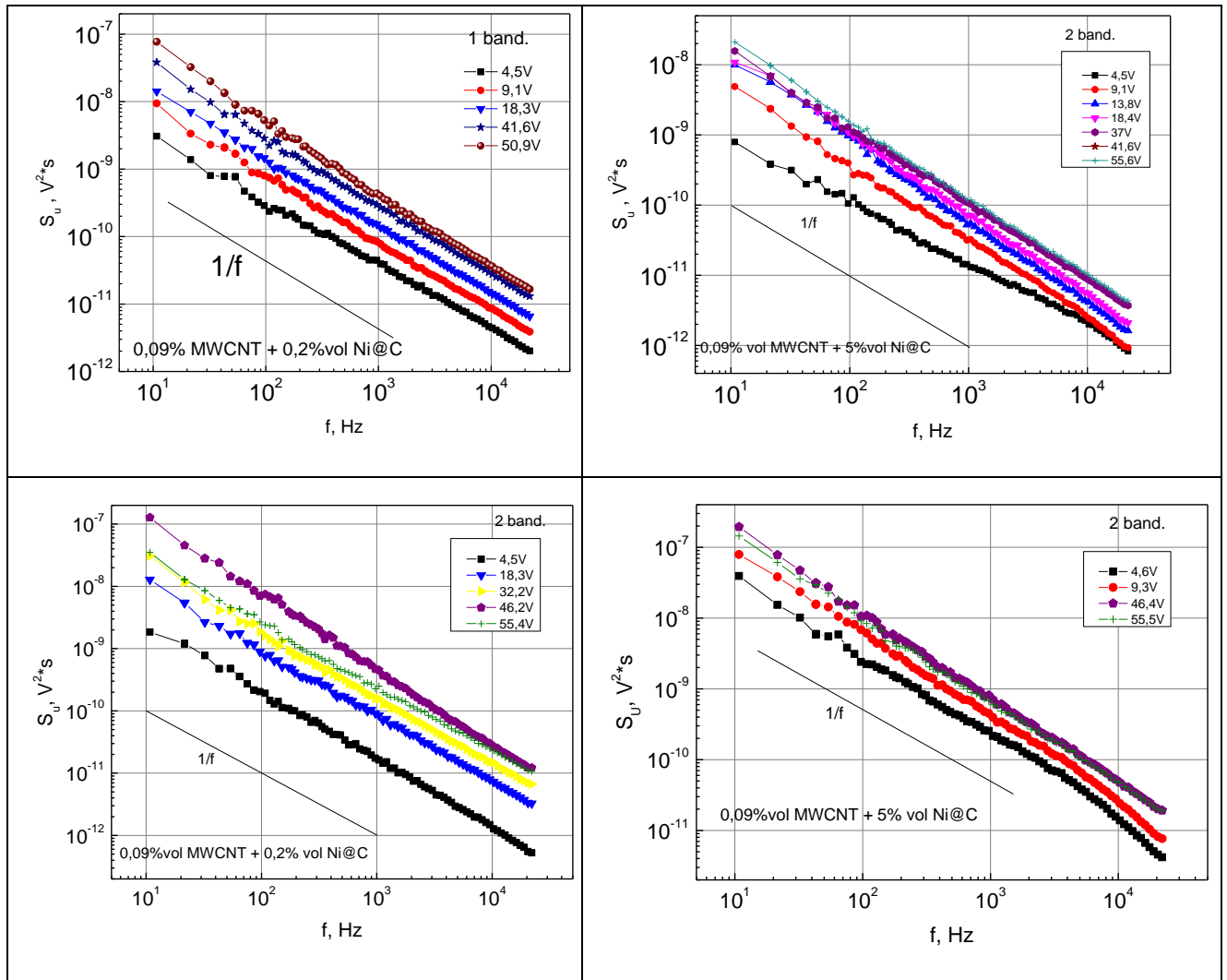
| Kompozitai                   |                  |                                       |                                  |  |
|------------------------------|------------------|---------------------------------------|----------------------------------|--|
| Rišamoji matrica             | Anglies užpildas | Anglies dalelių matmenys              | Tūrinis anglies kiekis kompozite | Darbe naudojami pavadinimai                          |
| epoksidinė derva Epikote 828 | MWCNT            | skersmuo 20–40 nm, ilgis – 0,5–200 μm | 0.09% vol                        | 0.09%vol MWCNT + 0,2%vol Ni@C,<br><b>1 band 0.2%</b> |
|                              | Ni@C             | 20 nm storio                          | 0.2% vol                         |  |
| epoksidinė derva Epikote 828 | MWCNT            | skersmuo 20–40 nm, ilgis – 0,5–200 μm | 0.09% vol                        | 0.09%vol MWCNT + 0,2%vol Ni@C,<br><b>2 band 0.2%</b> |
|                              | Ni@C             | 20 nm storio                          | 0.2% vol                         |  |
| epoksidinė derva Epikote 828 | MWCNT            | skersmuo 20–40 nm, ilgis – 0,5–200 μm | 0.09% vol                        | 0.09%vol MWCNT + 5%vol Ni@C,<br><b>1 band 5%</b>     |
|                              | Ni@C             | 20 nm storio                          | 5% vol                           |  |
| epoksidinė derva Epikote 828 | MWCNT            | skersmuo 20–40 nm, ilgis – 0,5–200 μm | 0.09% vol                        | 0.09%vol MWCNT + 5%vol Ni@C,<br><b>2 band 5%</b>     |
|                              | Ni@C             | 20 nm storio                          | 5% vol                           |  |

Keysight Technologies B1500A analizatoriaus pagalba išmatuotos varžinės charakteristikos. Pagal jas apskaičiuotos bandinių savitosios varžos ir nubrėžtos jų priklausomybės nuo įtampos, kurios yra pavaizduotos 3.1 paveiksle.



3.1 pav. Bandinių su 0,09%vol MWCNT ir 0,2% ir 5% vol Ni@C savitosios varžos priklausomybės nuo įtampos

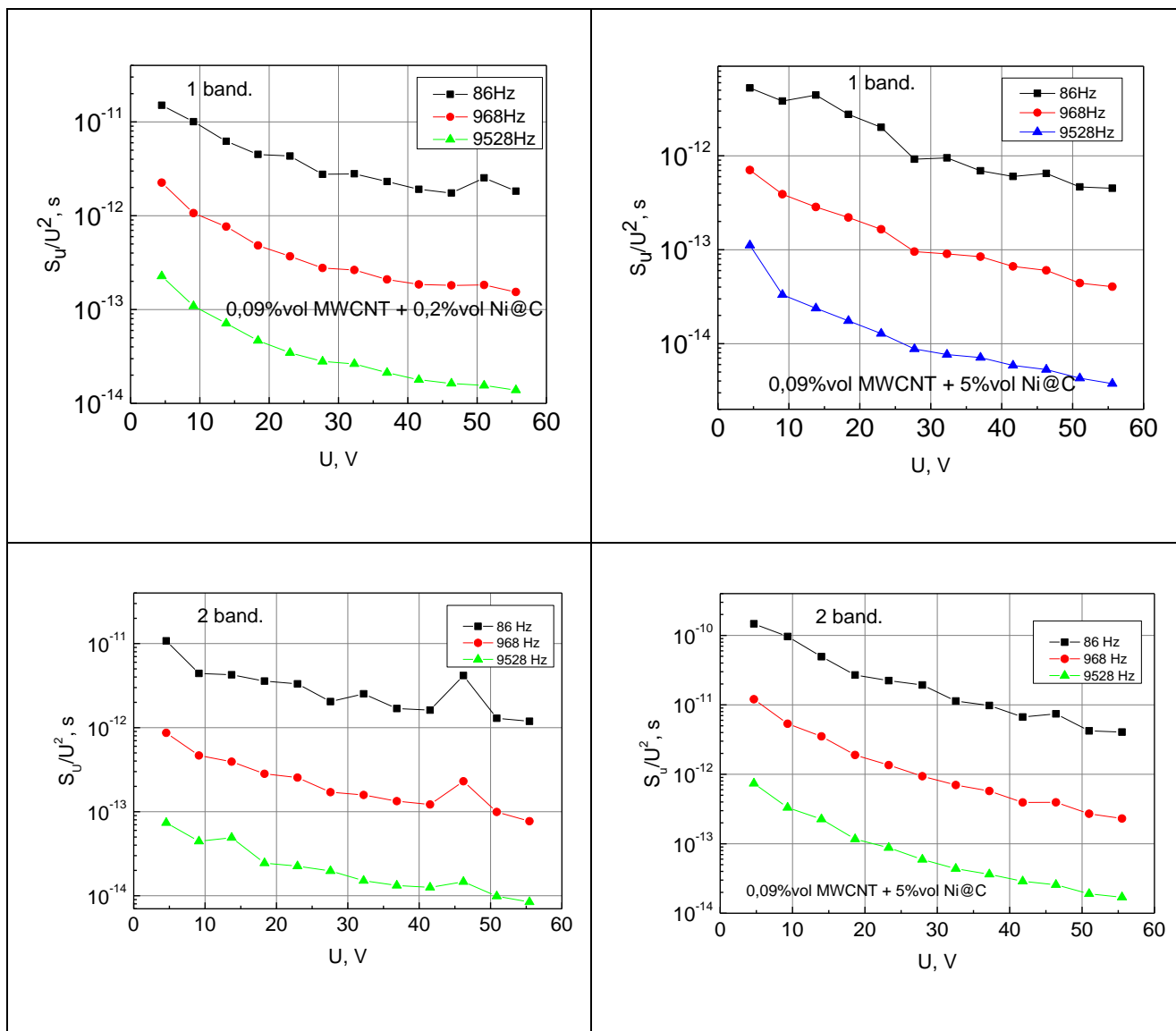
Labai puikiai matosi, jog didinant įtampą, savitoji bandinių varža mažėja abiejuose bandiniuose. Taip yra todėl, kad kompozitinėje medžiagoje yra tam tikri potencialiai barjerai ir pridėjus daugiau įtampos krūvininkai įveikia juos. Tad rezultate turime didesnę laidumą, ko pasekoje matomas savitosios varžos sumažėjimas.



3.2 pav. Įtampos triukšmo spektriniai tankiai skirtingiems kompozitams esant skirtingoms įtampoms kambario temperatūroje (295K)

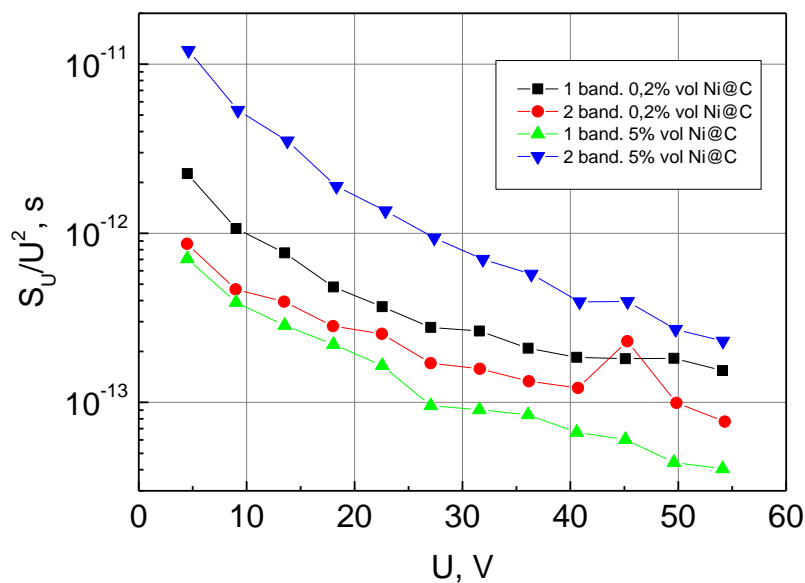
Paveikle 3.2 matome žemo dažnio triukšmo, gautas matavimo metu, charakteristikas, pagal kurias galime spręsti, jog dauguma triukšmo spektrų yra  $1/f^{\alpha}$  pobūdžio visame išmatuotame dažnių diapazone. Šie triukšmai yra nulemti Motto šuolių ir krūvininkų pagavimo ir išlaisvinimo procesų superpozicijos. Taip pat bandiniuose su 5% vol Ni@C prie žemų įtampų 4,6 – 9,3V ties 1250 Hz dažniu yra matomos generacinio-rekombinacinio triukšmo dedamosios kitoks polinkis nei, iš ko galime spręsti, jog šiame bandinyje stebimi gilesni krūvio pagavimo centrai. Taip pat atidėtos triukšmo spektrinių tankių priklausomybės nuo visų matavimo metu naudotų įtampų verčių. Taip pat atidėtos triukšmo spektrai nuo visų matavimo metu naudotų įtampų verčių. Juos galime pamatyti 3.4 paveiksle.





3.3 pav. Skirtingų kompozitų įtampos triukšmo spektrinių tankių priklausomybė nuo įtampos, prie fiksuotų 86, 968 ir 9528 Hz dažnių

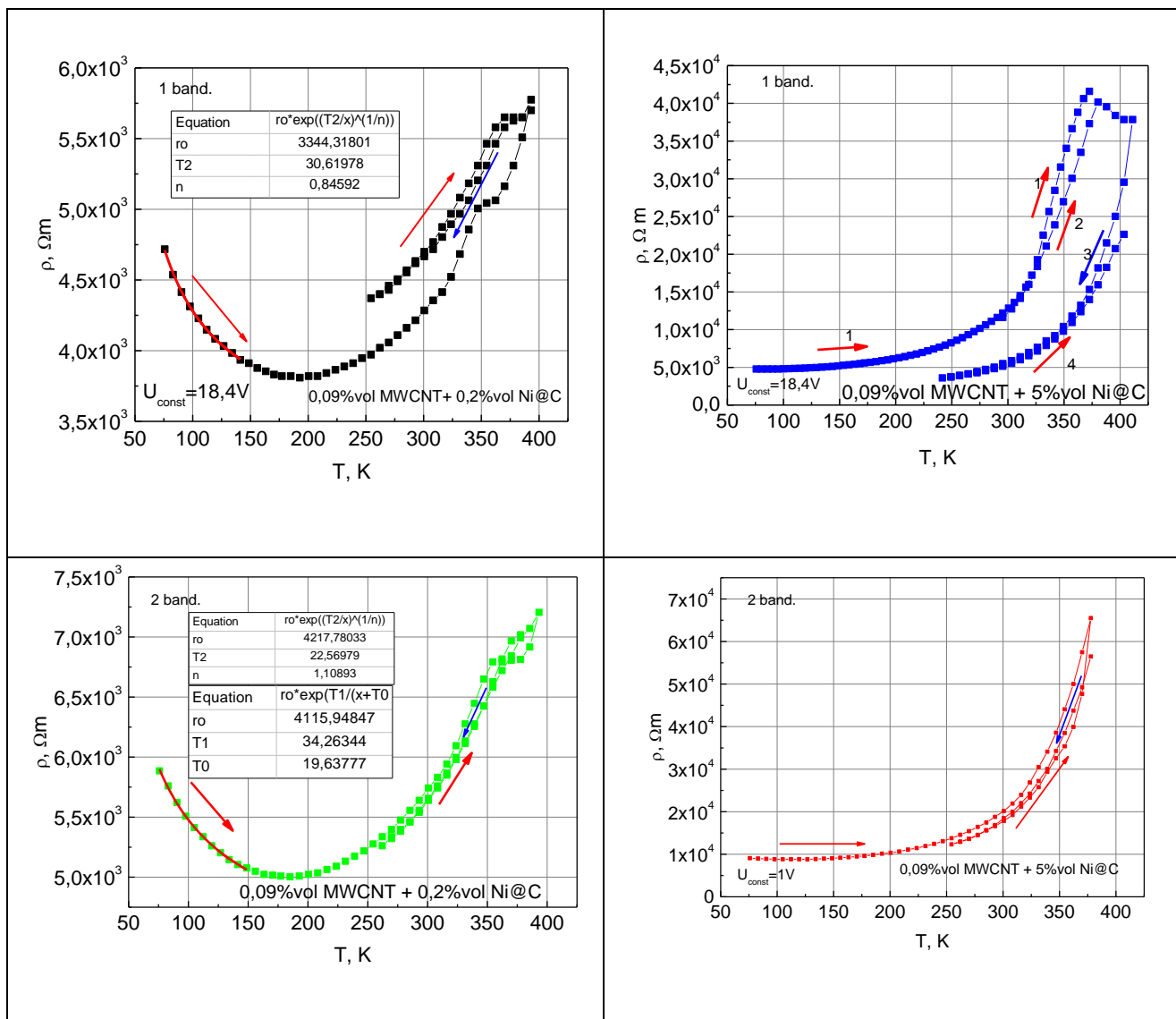
Paveiksle 3.3 matome, jog triukšmas bandinyje su 0,09%vol MWCNT + 0,2%vol Ni@C ir bandinyje su 0,09%vol MWCNT + 5%vol Ni@C didinant įtampą triukšmas stabiliai mažėja, kadangi didinant įtampą bandinių varža mažėja, ką jau matėme 3.1 pav. Taip pat palyginimui atidėtos ir bendram grafike visų bandinių spektrinių tankių priklausomybės nuo įtampos ties fiksuotu 968 Hz dažniu. Jos pavaizduotos 3.4 pav.



3.4 pav. Skirtingų kompozitų įtampos triukšmo spektrinių tankių priklausomybė nuo įtampos prie fiksuoto 968 Hz dažnio.

Pastebėta, jog triukšmų spektrinių tankių dydis nekoreliuoja su Ni@C koncentracijomis bandiniuose.

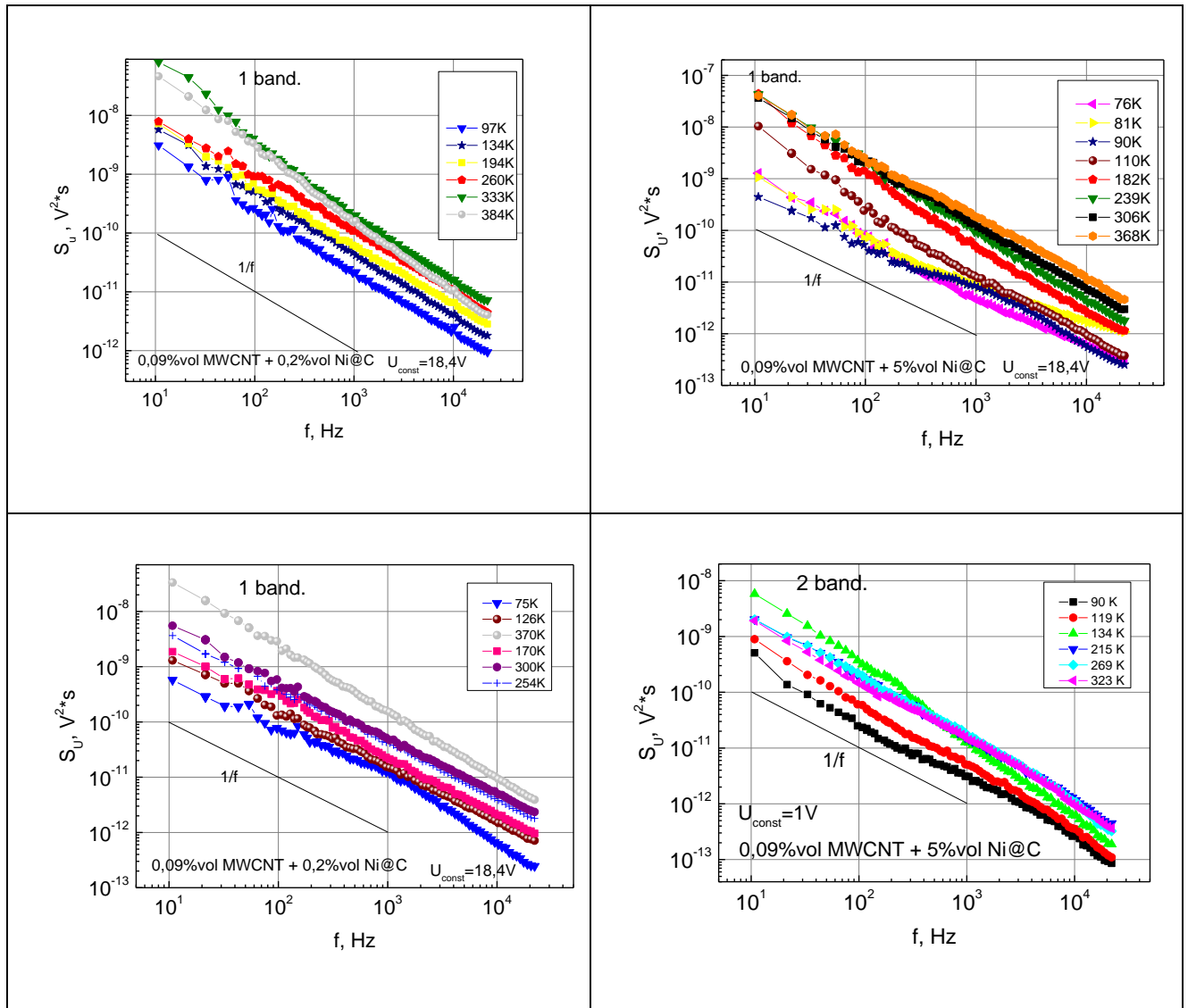
Toliau tyrimo metu bandiniai atšaldyti azotu iki 75K ir kaitinami iki 380K, vėl šaldomi žemiau 273K ir kaitinami iki 380K, ir stebimi fliktuacijų bei varžos pokyčiai kompozituose. Gauti rezultatai yra pavaizduoti 3.5 ir 3.6 paveiksluose.



3.5 pav. Bandinių su 0,09%vol MWCNT + 0,2% Ni@C ir 0,09%vol MWCNT + 5% vol Ni@C savitosios varžos priklausomybės nuo temperatūros esant pastoviai įtampai.

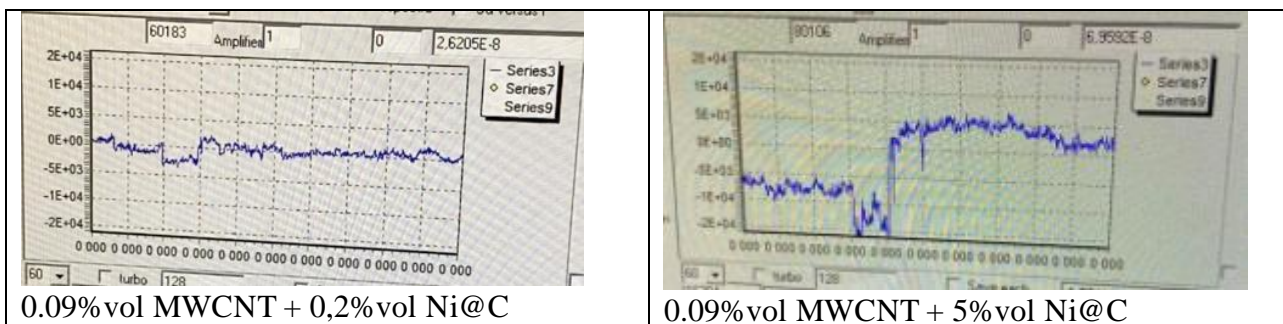
Paveiksle 3.5 rodyklės indikuoja šildymo ir šaldymo procesus (raudonos rodyklės šildymas, mėlynos šaldymas). Žemų temperatūrų diapazone (maždaug iki 200 K) pastebėtas varžos mažėjimas kylant temperatūrai, tad nuspręsta suaprosimuoti pagal Mott'o dėsnį. Iš jos gauta, kad užpildo dimensija, su 10% paklaida, lygi nuliui 1 bandinyje su 0,09 %vol MWCNT + 0,2 % vol Ni@C. Tad galima teigti, jog perkoliacinis tinklas buvo sudarytas iš Ni@C dalelių, kurios yra nulinės dimensijos. Vis dėl to 2 bandinyje su 0,09 %vol MWCNT + 0,2 % vol Ni@C dimensija gauta  $d=0.1$  su 13% paklaida. Tad jame perkoliacinis tinklas jau sudarytas ne vien iš Ni@C bet ir iš MWCNT dalelių. Taip pat buvo atlikta aproksimacija pagal tuneliavimą sukeltą fliktuacijomis. Iš 3.5 paveiksle pateiktų duomenų galima teigti, kad bandiniuose su 0,09 %vol MWCNT + 0,2 % vol Ni@C vyksta tunelinio krūvio pernešimas temperatūros intervale 75-180K, bet gauta  $T_0$  vertė gavo

žemesnė nei mūsų matuojamas temperatūrų intervalas, o tai rodo, jog krūvininkų tuneliavimas vyksta dėl šiluminio aktyvavimo.



3.6 pav. Įtampos triukšmo spektriniai tankiai skirtingiems kompozitams temperatūrų intervale nuo 75 iki 380 K esant pastoviai įtampai

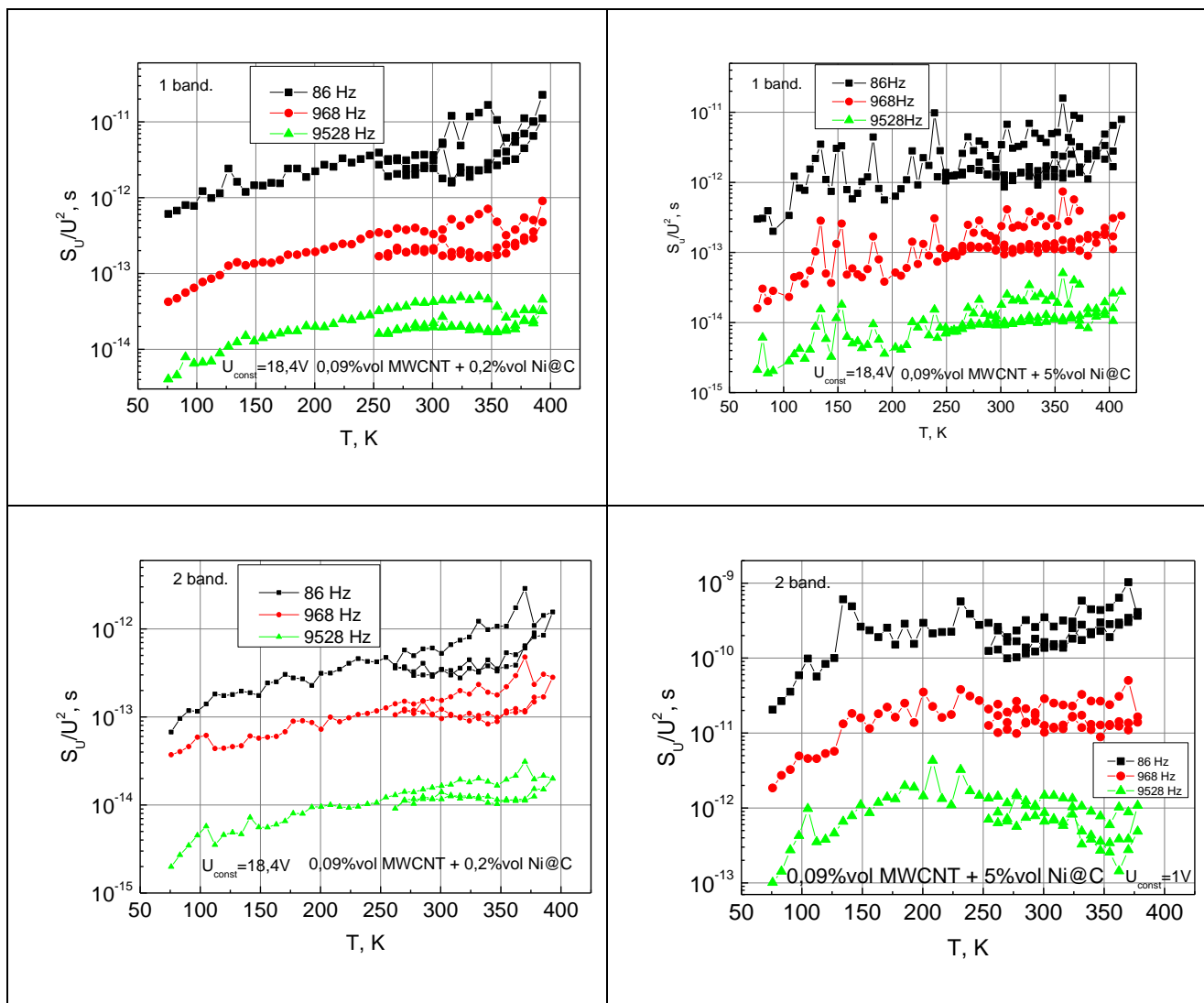
Paveiksle 3.6 matome panašaus pobūdžio triukšmą  $1/f^a$  kaip ir 3.2 paveiksle visame išmatuotame dažnių diapazone. Pastebime, kad 2 bandinyje su 0.09%vol MWCNT + 0,2%vol Ni@C yra generacinio-rekombinacinio triukšmų dedamųjų prie 75 K temperatūros ties 1100 Hz dažniu. Taip pat 1 ir 2 bandiniuose su 0.09%vol MWCNT + 5%vol Ni@C pastebime generacinio-rekombinacinio triukšmo dedamąsias temperatūrų intervale 76 - 120K prie 1100 Hz dažnio. Matavimo metu pastebėti impulsiniai triukšmai bandiniuose su 0.09%vol MWCNT + 0,2%vol Ni@C temperatūros intervale nuo 100-150K. Bandiniuose su 0.09%vol MWCNT + 5%vol Ni@C pastebėti temperatūros intervale 100-200K ir prie 370K. Impulsiniai triukšmai bandiniuose pavaizduoti 3.7 paveiksle.



3.7 pav. Impulsiniai triukšmai kompozituose

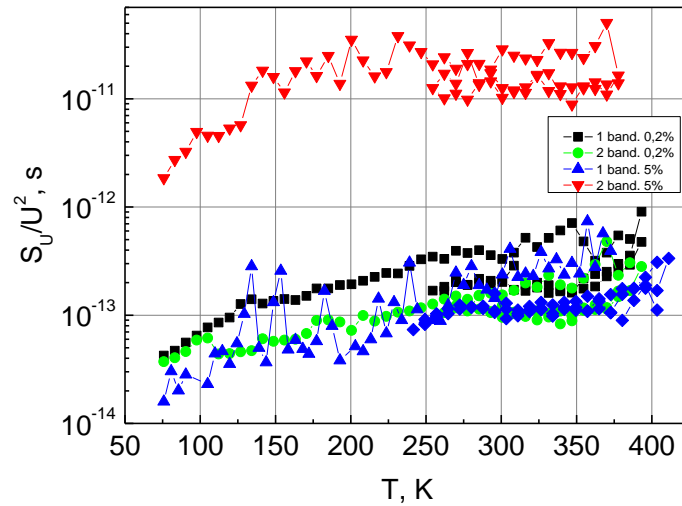
Bandiniuose su 0.09%vol MWCNT + 0,2%vol Ni@C stebėti impulsiniai triukšmai yra žymiai mažesni nei bandiniuose su 0.09%vol MWCNT + 5%vol Ni@C.

Taip pat atidėtos triukšmų spektrų priklausomybės nuo temperatūros. Jie yra pavaizduoti 3.8 paveiksle.



3.8 pav. Skirtingų kompozitų įtampos triukšmo spektrinių tankių priklausomybė nuo temperatūros, prie fiksuotų 86, 968 ir 9528 Hz dažnių esant pastoviai įtampai

Paveiksle 3.8 matome, tolygų triukšmų didėjimą didinant temperatūrą. Taip pat palyginimui 3.9 pav. atidėta ir visų keturių matuotų bandinių triukšmo spektriniai tankiai prie fiksuoto 968Hz dažnio.



3.9 pav. Skirtingų kompozitų įtampos triukšmo spektrinių tankių priklausomybė nuo temperatūros prie fiksuoto 968 Hz dažnio.

Iš 3.9 paveikslo matome, jog lygiai taip pat kaip ir 3.5 pav triukšmo spektrinių tankių dydžiai nekoreliuoja su Ni@C koncentracija kompozituose.

## 4. Išvados

1. Tirtame dažnių diapazone kompozitinių medžiagų su MWCNT ir Ni@C nanodalelėmis elektrinių fliuktuacijų spektrai beveik visada yra  $1/f^a$  tipo. Šie triukšmai yra nulemti Motto šuolių ir krūvininkų pagavimo, ir išlaisvinimo procesų superpozicijos.
2. Pastebėtos ir minimalios generacinio – rekombinacinio (GR) triukšmo dedamosios, kurias lemia gilieji krūvininkų pagavimo centrai.
3. Bandiniuose su 0,09%vol MWCNT + 0.2%vol Ni@C perkoliacinį tinklą pagrinde sudaro Ni@C dalelės.
4. Žemos temperatūros srityje 75 - 180 K bandiniuose su 0,09%vol MWCNT + 0.2%vol Ni@C vyksta termiškai aktyvuotas tuneliavimas.

## **Low Frequency Noise Characteristics and Charge Carrier Transfer Mechanisms of Composites with MWCNT and Ni@C Nanoparticles**

### **Summary**

Nowadays, technology is expanding very fast. This is one of the main reasons why more and more research is being carried out on a variety of substances with specific properties and characteristics. One such material is coal. The physical parameters of its various composites differ significantly from those of other materials. That is why there is so much interest in coal. Polymer composites with carbon nanoparticles have attracted a great deal of attention. Carbon nanotubes (CNTs) are distinctive for their physical and structural properties and have many prospects for the production of new materials [1,2]. One of the many materials that are associated with carbon is carbon-coated nickel nanoparticles Ni @ C. Nickel (Ni) nanoparticles and carbon-coated Ni nanoparticles have superparamagnetic or ferromagnetic properties that make them promising in the design of microwave absorbing devices due to magnetic loss [3,9]. In this area of scientific interest, low-frequency noise spectroscopy can be applied as an information method to investigate the conductance mechanisms of charge carriers in new materials [14].

The aim of this study was to investigate the low-frequency noise characteristics of composites and charge transfer mechanisms with a binding matrix of epoxy resin and a filler of Ni @ C and Multiwalled Carbon nanotubes (MWCNT) in the frequency range of 10 Hz to 20 Hz and temperature range of 75 K to 380 K.

The low frequency characteristics and charge transfer mechanisms of composites were investigated. In the studied frequency range, the electrical fluctuation spectra of composite materials with MWCNT and Ni @ C nanoparticles are almost always  $1/f$  type. These noises are due to the superposition of Mott's jumps and carrier capture and release processes. Minimal components of generational - recombinant (GR) noise caused by deep carrier capture centers were also observed in the samples at low voltages. In the study of the temperature characteristics of the samples, it was observed that thermally activated tunneling takes place in the low temperature range of 75 - 180 K samples with 0.09% vol MWCNT + 0.2% vol. It has also been observed from the Mott's approximation that in samples with 0.09% vol MWCNT + 0.2% vol Ni @ C the percolation network consists mainly of Ni @ C particles.



## 5. Literatūra

1. Kawahara, Toshio, Satarou Yamaguchi, Yasuhide Ohno, Kenzo Maehashi, Kazuhiko Matsumoto, Shin Mizutani, and Kenji Itaka. "Diameter Dependence of 1/f Noise in Carbon Nanotube Field Effect Transistors Using Noise Spectroscopy." *Applied Surface Science* 267 (February 2013): 101–5. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2012.08.003>.
2. Li, Tuo, Xiaowei Liu, Changchun Dong, and Liang Yin. "Single Chip Integration of MWCNTs/SiO<sub>2</sub> Thin Film Humidity Sensor Based on Standard CMOS IC Process." *Microelectronic Engineering* 119 (May 2014): 155–58. <https://doi.org/10.1016/j.mee.2014.04.007>.
3. Meisak, Darya, Jan Macutkevicius, Algirdas Selskis, Polina Kuzhir, and Juras Banys. "Dielectric Relaxation Spectroscopy and Synergy Effects in Epoxy/MWCNT/Ni@C Composites." *Nanomaterials* 11, no. 2 (February 23, 2021): 555. <https://doi.org/10.3390/nano11020555>.
4. Snow, E. S., J. P. Novak, M. D. Lay, and F. K. Perkins. "1/f Noise in Single-Walled Carbon Nanotube Devices." *Applied Physics Letters* 85, no. 18 (November 2004): 4172–74. <https://doi.org/10.1063/1.1812838>.
5. Sreeja, B.S. "Low-Power CMOS LC QVCO Using Zero-Biased Transistor Coupling of MWCNT Network-Based VCO Structure." *Microelectronics Journal* 45, no. 2 (February 2014): 196–204. <https://doi.org/10.1016/j.mejo.2013.10.014>.
6. Cao, Qing, Jerry Tersoff, Damon B. Farmer, Yu Zhu, and Shu-Jen Han. "Carbon Nanotube Transistors Scaled to a 40-Nanometer Footprint." *Science* 356, no. 6345 (June 30, 2017): 1369–72. <https://doi.org/10.1126/science.aan2476>.
7. Samanta, Sudeshna, M. Venkata Kamalakar, and A. K. Raychaudhuri. "Investigation of Very Low-Frequency Noise in Ferromagnetic Nickel Nanowires." *Journal of Nanoscience and Nanotechnology* 9, no. 9 (September 1, 2009): 5243–47. <https://doi.org/10.1166/jnn.2009.1146>.
8. Ruoff, Rodney S., Donald C. Lorents, Bryan Chan, Ripudaman Malhotra, and Shekhar Subramoney. "Single Crystal Metals Encapsulated in Carbon Nanoparticles." *Science* 259, no. 5093 (January 15, 1993): 346–48. <https://doi.org/10.1126/science.259.5093.346>.
9. Wang, SF., Xie, F. & Hu, RF. Electrochemical study of brucine on an electrode modified with magnetic carbon-coated nickel nanoparticles. *Anal Bioanal Chem* 387, 933–939 (2007). <https://doi.org/10.1007/s00216-006-0984-2>
10. Zhang, X. F., X. L. Dong, H. Huang, Y. Y. Liu, W. N. Wang, X. G. Zhu, B. Lv, J. P. Lei, and C. G. Lee. "Microwave Absorption Properties of the Carbon-Coated Nickel Nanocapsules." *Applied Physics Letters* 89, no. 5 (July 31, 2006): 053115. <https://doi.org/10.1063/1.2236965>.
11. <https://www.nanoshel.com/product/carbon-coated-nickel-nanoparticles> žiūrėta 2022-01-18.
12. A.A. El-Gendy, E.M.M. Ibrahim, V.O. Khavrus, Y. Krupskaya, S. Hampel, A. Leonhardt, B. Büchner, R. Klingeler, The synthesis of carbon coated Fe, Co and Ni nanoparticles and an examination of their magnetic properties. *Carbon*, Volume 47, Issue 12, 2009, 2821-2828.
13. M. Tretjak. *Low-Frequency Noise and Charge Carrier Transfer Mechanisms in Composites of Carbon Nanoparticles and Dielectric Matrix: Doktoro Disertacija*. Vilniaus Universitetas. Prieiga per ELABa – Nacionalinę Lietuvos Akademinę Elektroninę Biblioteką, 2021.

14. B.K. Jones, "Low-frequency noise spectroscopy," *IEEE Trans. Electron Dev.*, vol. 41, pp. 2188-2197, 1994
15. G. Sassine, F. Martinez, F. Pascal, and A. Hoffmann, "Comparison of the Effects of Different Surfactants on Electrical Parameters in Carbon Nanotube Thin Films," *IEEE Proc. Noise and Fluctuations (ICNF)*, 2011 2pt Int. Conf., pp. 472-475, 2011.
16. P. G. Collins, M. S. Fuhrer, A. Zetti, "1/f noise in carbon nanotubes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, pp. 894-896, 2000.
17. C. Barone, S. Pagano, and H. C. Neitzert, "Effect of concentration on low-frequency noise of multiwall carbon nanotubes in high-density polyethylene matrix," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, p. 152107, Oct. 2010.
18. J. Macutkevicius, P. P. Kuzhir, A. G. Paddubskaya, J. Banys, S. A. Maksimenko, E. Stefanutti, F. Micciulla, and S. Bellucci, "Broadband dielectric/electric properties of epoxy thin films filled with multi walled carbon nanotubes," *J. Nanophotonics*, vol. 7, pp. 073593, April 2013.
19. Park, Su-Jin. "Recent Advances in Carbon-Nanotube-Based Epoxy Composites." *Carbon Letters* 14, no. 1 (January 31, 2013): 1–13. <https://doi.org/10.5714/CL.2012.14.1.001>.
20. Guadagno, Liberata, Marialuigia Raimondo, Vittoria Vittoria, Luigi Vertuccio, Khalid Lafdi, Biagio De Vivo, Patrizia Lamberti, Giovanni Spinelli, and Vincenzo Tucci. "The Role of Carbon Nanofiber Defects on the Electrical and Mechanical Properties of CNF-Based Resins." *Nanotechnology* 24, no. 30 (August 2, 2013): 305704. <https://doi.org/10.1088/0957-4484/24/30/305704>.
21. Mott, N.F. *Metal-Insulator Transitions.*; Taylor & Francis: London, 1990; ISBN 978-0-85066-783-7.
22. Mott, N.F. *Conduction in Non-Crystalline Materials*; Clarendon Press ; Oxford University Press: Oxford; New York, 1987; ISBN 978-0-19-851981-2.
23. Mott, N.F.; Davis, E.A. *Electronic Processes in Non-Crystalline Materials*; Clarendon Press ; Oxford University Press: Oxford; New York, 1979; ISBN 978-0-19-851288-2.
24. Capaccioli, S, M Lucchesi, P A Rolla, and G Ruggeri. "Dielectric Response Analysis of a Conducting Polymer Dominated by the Hopping Charge Transport." *Journal of Physics: Condensed Matter* 10, no. 25 (June 29, 1998): 5595–5617. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/10/25/011>.
25. Dresselhaus, M. S., and G. Dresselhaus. "Intercalation Compounds of Graphite." *Advances in Physics* 51, no. 1 (January 2002): 1–186. <https://doi.org/10.1080/00018730110113644>.
26. Mandal, P., A. Neumann, A. G. M. Jansen, P. Wyder, and R. Deltour. "Temperature and Magnetic-Field Dependence of the Resistivity of Carbon-Black Polymer Composites." *Physical Review B* 55, no. 1 (January 1, 1997): 452–56. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.55.452>.
27. Terrones, Mauricio, Andrés R. Botello-Méndez, Jessica Campos-Delgado, Florentino López-Urías, Yadira I. Vega-Cantú, Fernando J. Rodríguez-Macías, Ana Laura Elías, Emilio Muñoz-Sandoval, Abraham G. Cano-Márquez, and Jean-Christophe Charlier. "Graphene and Graphite Nanoribbons: Morphology, Properties, Synthesis, Defects and Applications." *Nano Today* 5, no. 4 (August 2010): 351–72. <https://doi.org/10.1016/j.nantod.2010.06.010>.
28. Aguilar-Hernández, J, and K Potje-Kamloth. "Evaluation of the Electrical Conductivity of Polypyrrole Polymer Composites." *Journal of Physics D: Applied Physics* 34, no. 11 (June 7, 2001): 1700–1711. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/34/11/323>.
29. Triberis, G P, and L R Friedman. "The Effect of Correlations on the Conductivity of the Small-Polaron Regime in Disordered Systems." *Journal of Physics C: Solid State Physics* 18, no. 11 (April 20, 1985): 2281–86. <https://doi.org/10.1088/0022-3719/18/11/011>.

30. Rammal, R., C. Tannous, P. Breton, and A. -M. S. Tremblay. "Flicker ( 1 f ) Noise in Percolation Networks: A New Hierarchy of Exponents." *Physical Review Letters* 54, no. 15 (April 15, 1985): 1718–21. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.54.1718>.
31. Balberg, I. "Tunneling and Nonuniversal Conductivity in Composite Materials." *Physical Review Letters* 59, no. 12 (September 21, 1987): 1305–8. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.59.1305>.
32. Ambrosetti, G.; Grimaldi, C.; Balberg, I.; Maeder, T.; Danani, A.; Ryser, P. Solution of the Tunneling-Percolation Problem in the Nanocomposite Regime. *Physical Review B* 2010, 81, 155434.
33. Balberg, I., D. Azulay, D. Toker, and O. Millo. "PERCOLATION AND TUNNELING IN COMPOSITE MATERIALS." *International Journal of Modern Physics B* 18, no. 15 (June 20, 2004): 2091–2121. <https://doi.org/10.1142/S0217979204025336>.
34. Sheng, Ping, E. K. Sichel, and J. I. Gittleman. "Fluctuation-Induced Tunneling Conduction in Carbon-Polyvinylchloride Composites." *Physical Review Letters* 40, no. 18 (May 1, 1978): 1197–1200. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.40.1197>.
35. S. Iijima, Helical microtubules of graphitic carbon, *Nature* 354 1991, 56-58.
36. Maryam & Mohammadi, Toraj. (2019). Barrier, Diffusion, and Transport Properties of Rubber Nanocomposites Containing Carbon Nanofillers. 10.1016/B978-0-12-817342-8.00009-3.
37. N. Roy, R. Sengupta, A.K. Bhowmick, Modifications of carbon for polymer composites and nanocomposites, *Progress Polym. Sci.* 2012, 781-819.
38. B. Mensah, H.G. Kim, J.H. Lee, S. Arepalli, C. Nah, Carbon nanotube-reinforced elastomeric nanocomposites: a review, *Int. J. Smart Nano Mater.* 2015, 211-238.
39. Kogan, Sh. *Electronic Noise and Fluctuations in Solids*; Cambridge University Press: Cambridge, 1996; ISBN 978-0-521-46034-7.
40. K. Sears, L. Dume'e, J. Schu" tz, M. She, C. Huynh, S. Hawkins, et al., Recent developments in carbon nanotube membranes for water purification and gas separation, *Mater. (Basel)* 2010, 127-149.
41. C. Kingston, R. Zepp, A. Andrady, D. Boverhof, R. Fehir, D. Hawkins, et al., Release characteristics of selected carbon nanotube polymer composites, *Carbon* 2014, 33-57.
42. Nagavally, Rahul Reddy. "COMPOSITE MATERIALS-HISTORY , TYPES , FABRICATION TECHNIQUES , ADVANTAGES , AND APPLICATIONS." 2016.
43. Khosravani, Mohammad Reza. "Composite Materials Manufacturing Processes." *Applied Mechanics and Materials* 110–116 (October 24, 2011): 1361–67. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMM.110-116.1361>.
44. Barone, C., S. Pagano, and H. C. Neitzert. "Effect of Concentration on Low-Frequency Noise of Multiwall Carbon Nanotubes in High-Density Polyethylene Matrix." *Applied Physics Letters* 97, no. 15 (October 11, 2010): 152107. <https://doi.org/10.1063/1.3502485>.
45. Pralgauskaitė, Sandra, Vilius Palenskis, Jonas Matukas, Bronius Šaulys, Vladimir Kornijčuk, and Vadimas Verdingovas. "Analysis of Mode-Hopping Effect in Fabry–Pérot Multiple-Quantum Well Laser Diodes via Low Frequency Noise Investigation." *Solid-State Electronics* 79 (January 2013): 104–10. <https://doi.org/10.1016/j.sse.2012.07.021>.
46. Jones, B.K. "Low-Frequency Noise Spectroscopy." *IEEE Transactions on Electron Devices* 41, no. 11 (November 1994): 2188–97. <https://doi.org/10.1109/16.333840>.
47. Palenskis, V., J. Matukas, S. Pralgauskaitė, D. Seliuta, I. Kašalynas, L. Subačius, G. Valušis, S. P. Khanna, and E. H. Linfield. "Low-Frequency Noise Properties of Beryllium  $\delta$ -Doped GaAs/AlAs Quantum Wells near the Mott Transition." *Journal of Applied Physics* 113, no. 8 (February 28, 2013): 083707. <https://doi.org/10.1063/1.4792741>.

48. Palenskis, Vilius, Jonas Matukas, Juozas Vyšniauskas, Sandra Pralgauskaitė, Hadas Shtrikman, Dalius Seliuta, Irmantas Kašalynas, and Gintaras Valušis. “ANALYSIS OF NOISE CHARACTERISTICS OF GaAs TUNNEL DIODES.” *Fluctuation and Noise Letters* 12, no. 03 (September 2013): 1350014. <https://doi.org/10.1142/S0219477513500144>.
49. Collins, Philip G., M. S. Fuhrer, and A. Zettl. “1/f Noise in Carbon Nanotubes.” *Applied Physics Letters* 76, no. 7 (February 14, 2000): 894–96. <https://doi.org/10.1063/1.125621>.
50. Palenskis, V. *Fliktuacijos elektroninėse sistemose*; Vilnius University, Radiophysics Department: Vilnius, 1998;
51. Jian Guan, Shuxu Guo, Jinyuan Wang, Min Tao, Junsheng Cao, Fengli Gao, *Analysis of origin of measured 1/f noise in high-power semiconductor laser diodes far below threshold current*. *Microelectron. Reliab.* 59, (2016), p. 55-59.
52. J. Glemža, *Vienmodžių ir daugiamodžių lazerinių diodų žemadažnė triukšminė spektroskopija*. Vilniaus universitetas(2016).
53. L. K. J. Vandamme, *Noise as a Diagnostic Tool for Quality and Reliability of Electronic Devices*. *IEEE Trans. Electron Dev.* 41 (11), (1994), p. 2176-2187.
54. A.Konczakowska, B. M. Wilamowski *Noise in Semiconductor Devices* (2010).
55. Liu, Fei, and Kang L. Wang. “Correlated Random Telegraph Signal and Low-Frequency Noise in Carbon Nanotube Transistors.” *Nano Letters* 8, no. 1 (January 1, 2008): 147–51. <https://doi.org/10.1021/nl0722774>.
56. Böer, Karl W., and Udo W. Pohl. “Carrier Recombination and Noise.” In *Semiconductor Physics*, by Karl W. Böer and Udo Pohl, 1–55. Cham: Springer International Publishing, 2017. [https://doi.org/10.1007/978-3-319-06540-3\\_30-1](https://doi.org/10.1007/978-3-319-06540-3_30-1).
57. Meisak, Darya, Jan Macutkevici, Artyom Plyushch, Polina Kuzhir, Algirdas Selskis, and Juras Banys. “Dielectric Relaxation in the Hybrid Epoxy/MWCNT/MnFe2O4 Composites.” *Polymers* 12, no. 3 (March 21, 2020): 697. <https://doi.org/10.3390/polym12030697>.