# МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ

На правах рукопису

Шабельник Юрій Михайлович

УДК 537.621.3; 537.9

# ФІЗИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ СПЛАВІВ НА ОСНОВІ МАГНІТНИХ І БЛАГОРОДНИХ МЕТАЛІВ

01.04.07 – фізика твердого тіла

## **ДИСЕРТАЦІЯ**

на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук

Науковий керівник

## Проценко Іван Юхимович

заслужений діяч науки і техніки України,

доктор фізико-математичних наук, професор

# **3MICT**

ΠΕΙ	ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ				
BC	ГУП		5		
PO3	ЗДІЛ 1	ФІЗИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ			
		СПЛАВІВ (ЛІТЕРАТУРНИЙ ОГЛЯД)	10		
1.1.	Фазов	ий склад плівкових гранульованих сплавів	10		
1.2. Фізичні властивості плівкових систем із СЗР електронів			16		
	1.2.1.	Теоретичні моделі розмірних ефектів в електрорезистивних			
		властивостях багатошарових плівок	16		
	1.2.2.	Електрофізичні властивості плівкових гранульованих структур	20		
1.3.	Явище	е ГМО у плівкових гранульованих сплавах та магніторезистивні			
	власти	вості плівкових систем на основі Со і або Fe та Ag або Au	23		
Вис	Висновки до розділу 1				
PO3	<b>ВДІЛ 2</b>	МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ	31		
2.1.	Метод	ика отримання гранульованих плівкових сплавів	32		
	2.1.1.7	Гипова схема утворення т.р. та гранульованого сплаву у плівкових			
	(	системах на основі Co або Fe та Ag або Au	35		
	2.1.2.	Формування металевої ізоляційної підкладки та вимірювання КТ	36		
2.2.	Метод	и дослідження кристалічної структури, фазового та елементного			
	складу	/	38		
	2.2.1.1	Метод просвічуючої електронної мікроскопії	38		
	2.2.2.	Енергодисперсійний аналіз	40		
2.3.	Облад	нання для дослідження електрофізичних та магніторезистивних			
	власти	востей гранульованих плівкових сплавів	43		
	2.3.1.7	Гермічний коефіцієнт опору і коефіцієнт тензочутливості	43		
	2.3.2.	Магніторезистивні властивості	48		
	2.3.3.	Магнітооптичні властивості	54		
Висновки до розділу 2 5					

	3			
РОЗДІЛ З ФОРМУВАННЯ ПЛІВКОВИХ ТВЕРДИХ РОЗЧИНІВ НА				
ОСНОВІ МАГНІТНИХ І БЛАГОРОДНИХ МЕТАЛІВ	61			
3.1. Фазовий стан одношарових плівок Со, Fe, Ag та Au	61			
3.2. Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових				
систем на основі Со і Ag або Au	64			
3.2.1. Багатошарова плівкова система на основі Со і Ад	64			
3.2.2. Багатошарова плівкова система на основі Со і Аи	71			
3.3. Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем				
на основі Fe і Ag або Au	76			
3.4. Узагальнення та аналіз результатів вивчення фазоутворення у				
гранульованих плівкових сплавах на основі Со або Fe та Ag або Au	77			
Висновки до розділу 3	83			
РОЗДІЛ 4 ЕЛЕКТРОФІЗИЧНІ ТА МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАС-				
ТИВОСТІ ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ СПЛАВІВ	85			
4.1. Електрофізичні властивості плівкових системах на основі Со або Fe та				
Аg або Au	85			
4.1.1. Термічний коефіцієнт опору	85			
4.1.2. Коефіцієнт тензочутливості	92			
4.2. Магніторезистивні і магнітооптичні властивості	99			
4.2.1. Особливості структурно-фазового стану плівкових матеріалів із				
можливим СЗРЕ	99			
4.2.2. Магніторезистивні і магнітооптичні властивості плівкових сплавів				
на основі Со або Fe та Au або Ag	102			
4.3 Апробація теоретичних моделей	118			
4.3.1.Феноменологічна модель ТКО для гранульованих плівкових сплавів	119			
4.3.2. Феноменологічна модель КТ для гранульованих плівкових сплавів	121			
Висновки до розділу 4				
<b>ВИСНОВКИ</b> 1				
ПРИМІТКИ				
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ	130			

## ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ

- ГЩП гексагональна решітка з щільним пакуванням
- ГЦК кубічна гранецентрована решітка
- ОЦК кубічна об'ємноцентрована решітка
- ДП дефект пакування
- L-середній розмір кристалітів (зерен)
- ЕДС енергодисперсійний спектр

МО – магнітоопір

- АМО анізотропний магнітоопір
- ГМО гігантський магнітоопір
- МОКЕ магнітооптичний ефект Керра
- ПЕМ просвітлювальна електронна мікроскопія
- СДВП,  $\lambda_0$  середня довжина вільного пробігу носіїв заряду
- СЗРЕ спін-залежне розсіювання електронів
- ТКО,  $\beta$  термічний коефіцієнт опору
- *d* товщина плівкового зразка
- S<sub>B</sub> чутливість плівкової системи до магнітного поля
- *Т*<sub>в</sub> температура відпалювання

т.р. – твердий розчин

- *B*<sub>*C*</sub> індукція розмагнічування
- *B<sub>S</sub>* індукція насичення
- *B<sub>R</sub>* залишкова намагніченість
- КТ коефіцієнт тензочутливості

у<sub>1</sub> – середнє значення коефіцієнта поздовжньої тензочутливості (за кутовим
коефіцієнтом)

 $\gamma_{l\scriptscriptstyle M}$  — миттєве значення коефіцієнт поздовжньої тензочутливості

 $\gamma_{lm}$  – середнє значення коефіцієнта поздовжньої тензочутливості (усереднення  $\gamma_{lm}$ )

с – концентрація компонент в плівковій системі

### ВСТУП

Актуальність теми. Останніми роками набув розвитку новий напрямок електроніки – спінтроніка. Плівкові системи, що використовуються у приладах мікроелектроніки і спінтроніки, повинні задовольняти ряд вимог та критеріїв, таких як термічна стійкість структурно-фазового складу і стабільність характеристик у робочому діапазоні температур, деформацій, магнітних полів тощо. Цi характеристики можна реалізувати, використовуючи плівкові системи типу феромагнетик / благородний метал на основі Со або Fe та Cu, Pt, Pd, Ag або Au. Плівки перелічених металів у різних комбінаціях використовуються як чутливі елементи тонкоплівкових датчиків тиску, переміщення, температури, магнітного поля та ін. Різними науковими групами постійно ведеться пошук нових плівкових матеріалів із покращеними властивостями. Такими матеріалами можуть бути тверді розчини (т. р.) та гранульовані сплави. Аналізуючи літературні дані [1-8], можна говорити про накопичений теоретичний та експериментальний матеріал із досліджень магніторезистивних властивостей цих структур. Однак маловивченими залишаються питання впливу концентрації атомів особливості структурно-фазового магнітної компоненти на стану та електрофізичні властивості, впливу термовідпалювання на утворення т. р., зокрема, з елементами гранульованого стану. Тому актуальним питанням фізики твердого тіла на цей час залишається пошук оптимальних параметрів (температура, концентрація, товщина), що впливають на утворення термічно стабільних плівкових структур на основі магнітних і благородних металів.

Із вищенаведеного випливає доцільність комплексного вивчення фізичних властивостей тонкоплівкових структур на основі Со і Fe та Ag або Au, впливу спін-залежного розсіювання електронів (СЗРЕ) на властивості їх гранульованих сплавів. Важливим завданням є також розроблення теоретичних моделей, які б дали змогу спрогнозувати тензорезистивні або терморезистивні властивості цих структур.

Зв'язок роботи i3 науковими програмами, планами, темами. Дисертаційна робота виконувалася на кафедрі прикладної фізики Сумського державного університету. Основні результати були отримані у ході виконання держбюджетної НДР «Електрофізичні i магніторезистивні властивості нанорозмірних плівкових матеріалів із спін-залежним розсіюванням електронів», № 0112U001381 (2012 - 2014)НДР «Фазовий pp.), склад. електроi магніторезистивні властивості плівкових матеріалів i3 спін-залежним розсіюванням електронів», 0109U001387 (2009-2011 рр.) та НДР «Фазові перетворення, дифузійні процеси і магніторезистивні властивості мультишарів на основі Fe i Pd, Pt або Ag» у рамках науково-технічного співробітництва між Сумським державним університетом та Університетом Барода (м. Вадодара, Індія) у 2012 – 2014 рр. та міжнародного науково-технічного співробітництва Сумського державного університету та Інституту фізики при Університеті ім. Й. Гутенберга (м. Майнц, Німеччина) (2011 – 2012 pp.).

Дисертант брав участь у виконанні зазначених НДР як виконавець наукових досліджень та під час підготовки проміжних і заключних звітів.

Мета і задачі досліджень. Мета дисертаційної роботи полягала у комплексному дослідженні фізичних властивостей плівкових зразків на основі Со або Fe i Ag або Au y вигляді т. р. чи гранульованого сплаву, отриманого методом пошарової або одночасної конденсації із подальшим термовідпалюванням; особливостей структурно-фазового стану, електро-фізичних (терморезистивних і тензорезистивних) та магніторезистивних властивостей, ролі C3PE у плівкових твердих розчинах, зокрема гранульованих.

Відповідно до поставленої мети потрібно було вирішити такі наукові задачі:

– вивчити умови стабілізації т. р. на основі Со або Fe i Ag або Au iз елементами гранульованого стану і можливим СЗРЕ;

установити взаємозв'язок між електрофізичними властивостями (термічний коефіцієнт опору (ТКО)) та концентрацією феромагнітних компонент під час утворення т. р. з елементами гранульованого стану;

 установити взаємозв'язок між загальною концентрацією феромагнітних компонент у багатошарових плівкових системах та їх магнітоопором (МО) і магнітооптичним ефектом Керра (МОКЕ);

вивчити тензорезистивні властивості (коефіцієнт тензочутливості (КТ))
 плівкових т. р. з елементами гранульованого стану;

 розробити та апробувати феноменологічну модель для КТ гранульованого т. р.

*Об'єкт дослідження* – процеси грануляризації т. р. та їх вплив на фізичні властивості плівкових матеріалів.

Предмет дослідження – термо- і тензорезистивні та магніторезистивні і магнітооптичні властивості плівкових т. р. на основі Со або Fe i Ag або Au з елементами гранульованого стану.

*Методи дослідження* – вакуумна пошарова конденсація металів, просвітлювальна електронна мікроскопія (ПЕМ) та електронографія, енергодисперсійний рентгенівський мікроаналіз (ЕДА), тензометрія, чотириточковий метод вимірювання магнітоопору, вимірювання поздовжнього МОКЕ.

**Наукова новизна отриманих результатів.** Проведені в роботі комплексні експериментальні й теоретичні дослідження фізичних властивостей у плівкових т. р., зокрема гранульованих, дозволили отримати такі нові наукові результати:

1. Установлені умови формування гранульованих метастабільних ГЦК т. р. на основі Со або Fe i Ag або Au при пошаровій чи одночасній конденсації і термообробці відповідних дво- чи багатошарових плівкових систем, у яких реалізується СЗРЕ.

2. Установлений вплив структурно-фазового стану на електрофізичні та магніторезистивні властивості т. р. з елементами гранульованого стану.

3. Уперше запропонована та апробована теоретична модель для КТ т. р. з елементами гранульованого стану, з якої випливає, що величина КТ здебільшого визначається тензочутливістю фрагментів т. р., оскільки в гранулах реалізується балістичне перенесення носіїв струму.

4. Установлена кореляція між електрофізичними або магніторезистивними

властивостями та концентрацією компонент (*c*) у плівкових системах, з якої випливає, що максимальні значення ГМО (0,3– 0,6%) спостерігаються в системах із c = 40-60 ат. %. У сплавах на основі Fe та Au спостерігається анізотропний магнітоопір із величиною 0,3–0,4%.

Практичне значення отриманих результатів. Результати, отримані у ході проведених досліджень, дали змогу встановити вплив процесу термообробки на утворення т. р., зокрема з елементами гранульованого стану в плівкових зразках на основі Со і Fe та Ag або Au. Удосконалена методика формування т. р. шляхом пошарового осадження з подальшим термовідпаленням дає змогу отримувати стабільні т. р. з елементами гранульованого стану у матеріалах із можливим C3PE на основі феромагнітних і благородних металів. Крім того, результати вивчення впливу концентрації на структурно-фазові особливості, електрофізичні, магніторезистивні та оптичні властивості мають важливе практичне значення для створення стабільних структур, що використовуються як чутливі елементи різноманітних тонкоплівкових сенсорів. Запропонована в роботі теоретична феноменологічна модель для KT дає можливість прогнозувати тензорезистивні властивості плівкових матеріалів.

Фундаментальне значення отриманих результатів полягає у подальшому розвитку уявлень про фазоутворення, магніторезистивні та електрофізичні властивості плівкових зразків у вигляді т. р. з елементами гранульованого стану.

Особистий внесок здобувача полягає у самостійному пошуку й аналізі літературних джерел, проведенні експериментальних досліджень. Автор особисто отримував зразки, проводив дослідження структурно-фазових, електрофізичних, магніторезистивних та оптичних властивостей, обробку й аналіз отриманих результатів. Постановку задач досліджень і узагальнення результатів зроблено разом із науковим керівником д-м. фіз.-мат. наук, проф. Проценком І. Ю. В обговоренні результатів досліджень брали участь доц. Синашенко О. В., доц. Чешко І. В. та канд. фіз.-мат. наук Пазуха І. М. За консультацій д-ра фіз.-мат. наук, проф. Непийка С. О. (Інститут фізики Університету ім. Й. Гутенберга, м. Майнц, Німеччина) проведені дослідження

ефекту Керра. Особисто автором підготовлено текст статті [133] та тез доповідей [110, 140], окремі розділи статей [97, 127, 141]. Основні наукові результати доповідались особисто автором на наукових семінарах і конференціях. Усі наукові положення й висновки, винесені на захист, належать авторові дисертації.

Апробація результатів дисертації. Основні наукові та практичні результати роботи оприлюднені та обговорені на таких конференціях: «Фізика, електроніка, науково-технічних конференціях електротехніка» (м. Суми, 2010–2014 рр.); міжнародних конференціях студентів і молодих науковців із теоретичної та експериментальної фізики «ЕВРИКА» (м. Львів, 2011–2014 pp.); міжнародних конференціях «Nanomaterials: Applications and Properties» (м. Алушта, 2012–2014 рр.); міжнародних наукових конференціях «Фізико-хімічні основи формування і модифікації мікро- та наноструктур» (м. Харків, 2011, 2012 рр.); Міжнародній конференції «HighMatTech» (м. Київ, 2011 р.); Міжнародній конференції «Clusters and Nanostructured Materials» (м. Міжнародній конференції Ужгород. 2012 p.); молодих вчених «Low Temperature Physics» (м. Харків, 2012 р.); Міжнародній конференції «Фізичні явища в твердих тілах» (м. Харків, 2011 р.); Міжнародній практичній конференції «Nanotechnology and Nanomaterials» (Буковель, 2013 p.); Міжнародній конференції «Physics and Technology of Thin Films and Nanosystems» (м. Івано-Франківськ, 2013 р.).

Публікації. Результати дисертації опубліковані у 19 працях, серед яких 6 статей у фахових наукових журналах, 4 статті у матеріалах конференцій і 9 тез доповідей.

Структура і зміст роботи. Робота складається зі вступу, чотирьох розділів, висновків та списку використаних джерел із 169 найменувань на 18 сторінках. Дисертацію викладено на 147 сторінках, із них 86 сторінок основного тексту; робота містить 58 рисунків і 19 таблиць, зокрема 41 рисунок і 17 таблиць на 36 окремих аркушах.

#### **РОЗДІЛ 1**

# ФІЗИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ СПЛАВІВ (ЛІТЕРАТУРНИЙ ОГЛЯД)

### 1.1. Фазовий склад плівкових гранульованих сплавів

Пошук плівкових матеріалів з покращеними властивостями обумовлений високою функціональністю, широким застосуванням при створенні ïχ терморезисторів, тензодатчиків, сенсорів магнітних характеристик та ін. [9-11]. Плівкові матеріали повинні мати термічну стійкість структурно-фазового складу та стабільні характеристики у робочому діапазоні температур, деформацій, магнітного поля тощо. Потреби електроніки і спінтроніки обумовлюють пошук нових матеріалів, удосконалення технологій та методик **i**3 матеріалів стабільними електрофізичними або одержання магніторезистивними властивостей. Такими системами можуть бути гранульовані сплави та т.р. на основі феромагнітних та благородних металів (це, насамперед, Со або Fe та Ag або Au) [11-13]. Згідно з діаграмами стану [14] (рис. 1.1) системи на основі Со та Ад або Аи у звичайних умовах не перемішуються, лише при температурах вище 700 К відбувається часткова дифузія атомів даних металів з утворенням твердих розчинів. Також в системі на основі Со та Аи при швидкому охолодженні з рідинної фази сплавів при характерних концентраціях Со 25-49 ат. % та 69–96 ат. % утворюється метастабільна фаза твердого розчину т.р. (Co, Au). Системи на основі Fe та Ag або Au характеризується повною незмішуваністю компонент [14].

Плівкові системи на основі Fe і благородних металів знаходяться у полі зору дослідників, оскільки вони мають цікаві магнітні властивості при низьких і високих температурах, такі як гігантський магнітоопір (ГМО), суперпарамагнетизм та інші. Крім того, змінюючи концентрацію атомів Fe, режими термообробки, можна змінити фазовий склад системи на основі Fe та Au або Ag від евтектичного стану до т.р. і, як наслідок, досягти зміни їх електрофізичних властивостей [15].

Автори роботи [16] вивчали кристалічну структуру сплаву Fe<sub>x</sub>Au<sub>100-x</sub>, який був отриманий з допомогою методу механічного легування. На рентгенівських дифрактограмах наявні піки від ГЦК фази. За шириною рентгенівських дифракційних піків були оцінені розміри зерен, які змінюються від 112 нм (при x = 15 ат.%) до 32 нм (x = 30 ат.%). Параметр гратки зменшується із збільшенням концентрації. Мінімум спостерігається при концентрації атомів Fe на рівні 30 % і становить 0,401 нм (рис. 1.2). Критична температура нижча, ніж в аналогічних отриманих методом дугової сплавах, плавки 3 подальшим швидким загартуванням. У всіх зразках спостерігається явище ГМО. Максимальне значення ГМО (4%) характерне для плівкового сплаву на основі Fe і Au при загальній концентрації  $c_{Au} = 75$  ат. % і температурі 77 К.

Проаналізуємо структурно-фазові особливості та ïχ вплив на магніторезистивні властивості плівкових гранульованих сплавів на основі Fe та Ад або Ац, отриманих різними методами осадження. Це такі класичні методи, конденсація, випарування сплавів. як одночасна вакуумна масивних електрохімічне осадження, високочастотна конденсація.

У роботі [17] було досліджено вплив концентрації окремих компонент гранульованої плівкової системи на основі Fe та Au на магнітні властивості (насамперед, на магнітну взаємодію між собою наногранул Fe в немагнітній Авторами [17] розглянуті дві системи відносною матриці срібла). 3 концентрацією атомів заліза у системі на рівні 25 та 35 ат. %. Зразки досліджувалися в температурному інтервалі  $273 \le T_e \le 473$  К. Були встановлені особливості. Фазовий наступні аналіз, проведений за допомогою рентгенографічного методу показав наявність ГЦК-фази Ад (лінії (111), (200), (222) та (311)). Пік (110) від ОЦК-фази Fe не розділявся через накладання на нього більш інтенсивного піку Ад (200). Першому і другому піку відповідає параметр гратки *a* = 0,4009 та 0,4003 нм.

Робота [18] присвячена розгляду магнітної взаємодії наночастинок Fe у гранульованому сплаві Fe-Ag. Розглянуті дві плівкові структури – Fe<sub>50</sub>Ag<sub>50</sub> та Fe<sub>55</sub>Ag<sub>45</sub>, які були отримані методом імпульсного лазерного осадження. Методами



Рис. 1.1. Діаграми стану систем на основі Со і Аи або Ag (a) та Fe і Au або Ag (б). Із роботи [14]



Рис. 1.2. Залежність параметра гратки ГЦК-т.р. (Au, Fe) від загальної концентрації атомів Fe у плівковій системі. Суцільна лінія – правило Вегарда. Табличні дані для параметрів гратки:  $a_0$  (Au) = 0,4078 нм;  $a_0$  ( $\gamma$ -Fe ) = 0,3647 нм. Із роботи [16]

рентгенівської дифрактометрії, спектроскопії поглинання рентгенівських променів, ПЕМ високої роздільної здатності були отримані рентгенограми та зображення мікроструктури даних зразків. Ці зразки, як показано на рис. 1.3 а складаються з гранул ОЦК-Fe розміром 2–4 нм та наночастинок ГЦК-Ag розміром 10–12 нм, розділених аморфним інтерфейсом Fe<sub>50</sub>Ag<sub>50</sub>.



Рис. 1.3. Структура плівкового зразка Fe<sub>50</sub>Ag<sub>50</sub>, отриманого методом ПЕМ високої роздільної здатності (а) та відповідна рентгенограма (б). Із роботи [18]

У роботі [19] вивчено вплив умов отримання плівкового сплаву магнетронним методом на магніторезистивні властивості. Так, залежно від тиску робочого газу ( $P = 0,1\div0,7$  Па) зменшувалося значення магнітоопору від 24 % до 2 % при P = 0,7 Па. Робота [20] присвячена вивченню структурних та магнітних властивостей тонкоплівкових зразків на основі сплаву FePt та Ag. Були вивчені властивості тришарових зразків типу FePt/Ag/FePt. Товщина шару FePt була фіксована і становила 15 нм, а товщина шару Ag варіювалася від 0,3 нм до 30 нм. Термовідпалювання проводилось при температурах 373–1173 К. При високих температурах (500–900 °C) відбувається дифузія атомів Ag на межі зерен шарів FePt та верхній шар, який характеризується підвищеною шорсткістю.

Авторами роботи [21] було розглянуте питання впливу термообробки на стабільність характеристик т.р. та плівкових гранульованих сплавів на основі Fe та

Аg. Зразки отримували магнетронним методом розпилення з масиву. Для підтвердження структурно-фазового складу в роботі використовувався XANESметод (крайова спектроскопія високої роздільної здатності). Оптимальна концентрація Fe в системі для утворення твердого розчину – 38 ат. %. Структура до температури 673 К залишається стабільною, а після цієї температури відбувається часткове руйнування твердого розчину та утворення нових фаз.

Механізми утворення та властивості гранульованого стану т.р. на основі Со та Ag вже достатньо довгий час вивчаються, а т.р. на основі Co та Cu вже вивчені. Так, авторами робіт [22, 23] методами рентгенографії, електронографії, електронної мікроскопії були проведені експериментальні дослідження вище вказаних матеріалів. Авторами [24] був змодельований процес формування кластерів на основі атомів Co. Як видно з рис. 1.4, найвигіднішою позицією для утворення т.р. та гранул Co є той випадок, коли атоми Co знаходяться в об'ємі плівкового зразка. У цьому випадку енергія утворення даних структур ( $\Delta E_a$ ) найменша і складає – 0,19 еВ.

В системах на основі Со та Ag або Au через обмежену взаємну розчинність, про що говорилося вище, відбувається гранулоутворення. Приклади мікрознімків з великою роздільною здатністю гранульованих сплавів на основі Со та Ag або Au представлені на рис. 1.5. У процитованих роботах [25, 26] була проведена кореляція між структурно-фазовим магніторезистивними станом та властивостями. На рис. 1.5 б зображена кластерна структура гранул. У багатошарових плівкових системах та сплавах на основі Со і Ад або Аи через розчинність відбувається обмежену взаємну активне гранулоутворення. Відмітимо, що автори [26] спостерігали тонку структуру гранул (рис. 1.4 в), яка полягає в тому, що гранули розміром D = 20-25 нм складаються із 20-30 кластерів розміром 3 нм. Подібну, але не так чітко виражену, кластерну структуру гранул спостерігали також автори [27] (рис. 1.5 б). Аналіз мікрознімків вказує на те, що у відпалених зразках середня відстань між гранулами Со складає l = 10-30 нм, а відношення D/l = 0,7-1 або 1 для відпалених сплавів Au<sub>20</sub>Co<sub>80</sub> [27] і CoAg [26].

З літературних даних [28-31] відомо, що в залежності від умов отримання



Рис. 1.4. Зміна енергії зв'язку двоатомного кластера Со із (001)Си підкладкою залежно від його локалізації (а) та енергетика утворення поверхневого кластера Со (б). Із роботи [22]



Рис. 1.5. Мікроструктура гранульованого сплаву на основі Ag i Co (a, б) [25] та Co i Au (в) у невідпаленому (а) та відпаленому до 600 К (б) [26] i 770 К (в) [27] стані

плівкових зразків (тиск залишкових газів, методи осадження, час та швидкість конденсації) величина зерен та кристалів, частинок т.р. відрізняються на порядок. Плівкові зразки отримувалися як стандартними методами, так і в статті [30] розглядається метод виділення субмікронних частинок т.р.-(Au, Fe) з допомогою твердотільної сушки моношарів сплаву Au-Fe. Дослідження структурно-фазового складу проводили як на звичайних просвічуючих мікроскопах та ПЕМ з високою роздільною здатність [28], так і з допомогою рентгено-спектральних методів на рентгенівському фотоелектронному GIXRD-спектрометрі спектрометрі [29], (спектрометр i3 фіксованим просковзуючим кутом падіння променів) [30], а також розмір зерен визначали з допомогою скануючого тунельного мікроскопу [31]. Аналіз літературних даних показав, що в залежності від умов отримання діаметр наночастинок змінюється від 5 до 110 нм [32, 33]. Це значно більше у порівнянні кристалів сандвічів на основі Fe та Cu, де середній розмір зерна становить 10 нм. Також в роботі [34] говориться про утворення метастабільного нанокристалічного сплаву Ag-Fe. Зразки були одержані хімічним методом при термовідпаленні до 673 К при загальній концентрації Fe на рівні 10-75 ат. %. При вищих температурах сплав зазнає значних змін у кристалічній структурі та магнітних характеристиках.

## 1.2. Фізичні властивості плівкових систем із СЗР електронів

# 1.2.1. Теоретичні моделі розмірних ефектів в електрорезистивних властивостях багатошарових плівок

Розмірний ефект (РЕ) в електрофізичних властивостях плівкових систем проявляється при співмірності їх товщини з середньою довжиною вільного пробігу (СДВП) електронів провідності  $\lambda_0$  в об'ємі зразка. Перша модель РЕ в електропровідності металевих монокристалічних пластин була запропонована ще в 1938 р. К. Фуксом і доповнена в 1950-х рр. для випадку гальваномагнітних ефектів Ф. Зондгеймером [35]. Однак для опису властивостей полікристалічних

плівок необхідно враховувати крім зовнішнього також і внутрішній РЕ (розсіювання на інтерфейсах зерен), що вперше було здійснено в теорії А. Маядаса і М. Шатцкеса (МШ) [36]. Теорія РЕ в електропровідності і температурному коефіцієнті опору (ТКО) двошарових металевих плівок вперше була запропонована в роботах Ф. Варкуша і Р. Дімміха [37, 38]. Розглянувши двошарову плівкову систему як паралельне з'єднання двох провідників, було отримано співвідношення для ТКО в найзагальнішому вигляді:

$$\begin{split} \beta &= A_1 \left\{ \beta_{01} \cdot \left( 1 - \frac{d\ln F_1}{d\ln k_1} - \frac{d\ln F_1}{d\ln nm_1} + \frac{d\ln F_1}{d\ln na} \right) - \beta_{02} \cdot \left( \frac{d\ln F_1}{d\ln k_2} + \frac{d\ln F_1}{d\ln nm_2} + \frac{d\ln F_1}{d\ln na} \right) \right\} + \\ &+ A_2 \left\{ \beta_{02} \cdot \left( 1 - \frac{d\ln F_2}{d\ln k_2} - \frac{d\ln F_2}{d\ln nm_2} - \frac{d\ln F_2}{d\ln na} \right) - \beta_{01} \cdot \left( \frac{d\ln F_2}{d\ln k_1} + \frac{d\ln F_2}{d\ln nm_1} - \frac{d\ln F_2}{d\ln na} \right) \right\} \end{split}$$

де 
$$F_i = \rho_{0i} / \rho_i - функція Фукса (i = 1, 2);$$
  
 $k_i = d_i / \lambda_{0i}, m_i = L_i / \lambda_{0i} -$ зведені товщина і середній розмір кристалітів;  
 $a = \lambda_{01} \cdot H_2 \cdot m_2^* (\lambda_{02} H_1 m_1^*)^{-1}$ , де  $m^*$  – ефективна маса електрона,  $H_i = H_i(\alpha, \varphi)$  – відома функція параметра  $\alpha$  та кута падіння  $\varphi$  електрона до поверхні плівки;  
 $A_i = d_i \sigma_{0i} F_i / (d_1 \sigma_{01} F_1 + d_2 \sigma_{02} F_2) = d_i \sigma_i / (d_1 \sigma_1 + d_2 \sigma_2); \rho_i (\rho_{0i})$  та  $\sigma_i (\sigma_{0i})$  – питомий опір та провідність для тонкої плівки відповідно.

В роботі Л.В. Дехтярука та ін. [39] запропонована модель електропровідності і ТКО для двошарових полікристалічних плівок, яка враховує ефекти теплового розширення шарів металу товщиною  $d_i$  та ширини зерна  $L_i$  за рахунок введення параметрів  $\chi_{d_i} = d \ln d_i / dT$  та  $\chi_{L_i} = d \ln L_i / dT$ . Автором при побудові моделі вводиться допущення, що параметри електроперенесення не залежать від температури. Розв'язок кінетичного рівняння Больцмана для функції розподілу електронів в кожному шарі дозволив отримати вирази для розмірних функцій  $\Phi_i$ , які входять у рівняння для питомої провідності  $\sigma = \frac{1}{d} \sum_{i=1}^2 d_i \sigma_{0i} \Phi_i$ . Після деяких спрощень було отримано співвідношення для ТКО:

$$\begin{split} \beta &= A_1 \beta_{\infty 1} \left\{ 1 - \frac{3}{2} \alpha_1 - \frac{3}{16} \frac{\lambda_1}{d_1} \bigg[ (2 - q_1 - P_{12}) \bigg( 1 - \frac{12}{\pi} \alpha_1 \bigg) + \frac{3}{5\pi} Q_{21} \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \alpha_1 \bigg] + \\ &+ \frac{3}{16} Q_{21} \frac{\lambda_2}{d_1} \frac{\beta_{\infty 2}}{\beta_{\infty 1}} \bigg[ 1 - \frac{32}{3\pi} \bigg( 2\alpha_2 + \frac{1}{16} \alpha_1 \bigg) \bigg] \bigg\} + \\ &+ A_2 \beta_{\infty 2} \left\{ 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 - \frac{3}{16} \frac{\lambda_2}{d_2} \bigg[ (2 - q_2 - P_{21}) \bigg( 1 - \frac{12}{\pi} \alpha_2 \bigg) + \frac{3}{5\pi} Q_{12} \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \alpha_2 \bigg] + \\ &+ \frac{3}{16} Q_{12} \frac{\lambda_1}{d_2} \frac{\beta_{\infty 1}}{\beta_{\infty 2}} \bigg[ 1 - \frac{32}{3\pi} \bigg( 2\alpha_1 + \frac{1}{16} \alpha_2 \bigg) \bigg] \bigg\}, \end{split}$$

де  $\beta_{\infty i}$  – ТКО нескінченно товстої влівки;

*q<sub>i</sub>*, *P<sub>ij</sub>*, *Q<sub>ij</sub>* – коефіцієнти дзеркальності поверхні, розсіювання і проходження меж розділу шарів відповідно.

Дана теоретична модель для двошарових систем отримала розвиток в [40] та розширена на багатошарову систему [41].

Розмірна і температурна залежності параметрів електропереносу і ТКО аналізувалися в роботах [42-44]. Виходячи з цих даних, параметри r та R, що описують зерномежове розсіювання, слабо змінюються з температурою на відміну від коефіцієнта дзеркального відбиття p. Зазначені закономірності в температурних залежностях вимагають подальшого дослідження і побудови теорії для опису залежності  $\beta(T)$  для двох-і багатошарових плівкових систем.

В [45] була запропонована більш проста для прогнозу величини ТКО макроскопічна модель, основне співвідношення якої має вигляд:

$$\beta = \beta_1 + \beta_2 - \frac{d_1 \beta_2 \rho_2 + d_2 \beta_1 \rho_1}{d_1 \rho_2 + d_2 \rho_1}.$$
(1.1)

У роботах [46, 47] розроблено теорію і електропровідності, які враховують розсіювання електронів на потенціалах іонів та коливання спіна в неупорядкованих сплавах заміщення.

Авторами [48] також була здійснена розробка напівфеноменологічної теоретичної моделі КТ для багатошарових плівкових систем та мультишарів. Автори виходять із того, що від деформації залежить не тільки СДВП, а й

коефіцієнт розсіювання і проходження межі зерен та межі поділу шарів. У цьому випадку функція Фукса залежить не тільки від k,  $p^*$  і r, а й від m і Q. У розгорнутому вигляді похідну  $\frac{d \ln F(k,m)}{d \ln l}$ , наприклад для  $F_1$ , [48] можна подати

таким чином:

$$\begin{split} &\frac{d\ln F_1(k_1, m_1, p_1^*, r_1)}{d\ln l} = \left(\frac{d\ln F_1}{d\ln k_1} \frac{d\ln k_1}{d\ln l} + \frac{d\ln F_1}{d\ln m_1} \frac{d\ln m_1}{d\ln l}\right) + \\ &+ \left(\frac{d\ln F_1}{d\ln k_1} \frac{d\ln k_1}{d\ln l} \frac{d\ln k_2}{d\ln l} + \frac{d\ln F_1}{d\ln m_1} \frac{d\ln m_1}{d\ln m_2} \frac{d\ln m_1}{d\ln l}\right) + \\ &+ \left(\frac{d\ln F_1}{d\ln k_1} \frac{d\ln k_1}{d\ln p_1^*} \frac{d\ln p_1^*}{d\ln l} + \frac{d\ln F_1}{d\ln k_1} \frac{d\ln k_1}{d\ln Q} \frac{d\ln Q}{d\ln l}\right) + \\ &+ \left(\frac{d\ln F_1}{d\ln k_1} \frac{d\ln k_1}{d\ln k_2} \frac{d\ln k_2}{d\ln p_2^*} \frac{d\ln p_2^*}{d\ln l} + \frac{d\ln F_1}{d\ln k_1} \frac{d\ln k_1}{d\ln k_2} \frac{d\ln k_2}{d\ln Q} \frac{d\ln Q}{d\ln l}\right) + \\ \end{split}$$

Виходячи з цього виразу, автори [49] отримали співвідношення для  $\gamma_l$ плівкової системи із довільною кількістю шарів, яке враховує поверхневе і зерномежове розсіювання електронів. Співвідношення для  $\gamma_l$  для тришарової плівкової системи можна записати у наступному вигляді:

$$\begin{split} &\gamma_{l} = A_{1} \left\{ \left( \gamma_{01l}^{\rho} + \mu_{1}^{\prime} \right) - \left( 1 - \frac{\beta_{1}}{\beta_{01}} \right) \left[ \left( 2\gamma_{01l}^{\rho} - 1 - \mu_{1}^{\prime} - \eta_{p1l} \frac{d\ln k_{1}}{d\ln p_{1}} - \eta_{Q1l} \frac{d\ln k_{1}}{d\ln Q_{1}} - \eta_{r1l} \frac{d\ln m_{1}}{d\ln r_{1}} \right) + \\ &+ \left( \gamma_{02l}^{\rho} - 1 - \mu_{2}^{\prime} - \eta_{p2l} \frac{d\ln k_{2}}{d\ln p_{2}} - \eta_{Q2l} \frac{d\ln k_{2}}{d\ln Q_{2}} - \eta_{r2l} \frac{d\ln m_{2}}{d\ln r_{2}} \right) \frac{\beta_{01}}{\beta_{02}} \right] \right\} + \\ &+ A_{2} \left\{ \left( \gamma_{02l}^{\rho} + \mu_{1}^{\prime} \right) - \left( 1 - \frac{\beta_{2}}{\beta_{02}} \right) \left[ \left( 2\gamma_{02l}^{\rho} - 1 - \mu_{2}^{\prime} - \eta_{p2l} \frac{d\ln k_{2}}{d\ln p_{2}} - \eta_{Q2l} \frac{d\ln k_{2}}{d\ln Q_{2}} - \eta_{r2l} \frac{d\ln m_{2}}{d\ln r_{2}} \right) + \\ &+ \left( \gamma_{03l}^{\rho} - 1 - \mu_{3}^{\prime} - \eta_{p3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln p_{3}} - \eta_{Q3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln Q_{3}} - \eta_{r3l} \frac{d\ln m_{3}}{d\ln r_{3}} \right) \frac{\beta_{02}}{\beta_{03}} \right] \right\} + \\ &+ A_{3} \left\{ \left( \gamma_{03l}^{\rho} + \mu_{3}^{\prime} \right) - \left( 1 - \frac{\beta_{3}}{\beta_{03}} \right) \left[ \left( 2\gamma_{03l}^{\rho} - 1 - \mu_{3}^{\prime} - \eta_{p3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln Q_{3}} - \eta_{r3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln p_{3}} - \eta_{Q3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln p_{3}} - \eta_{Q3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln p_{3}} - \eta_{Q3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln p_{3}} - \eta_{r3l} \frac{d\ln k_{3}}{d\ln p_{3}} - \eta_{r$$

де 
$$Q_1 = Q_{12} = Q_{21,}Q_2 = Q_{21} = Q_{23,}Q_3 = Q_{32} = Q_{23,}Q_{13} = \frac{Q_{12} + Q_{23}}{2}$$
 та  $Q_{31} = \frac{Q_{12} + Q_{23}}{2}$ ,

 $\mu'_i$  – коефіцієнт Пуассона для багатошарової плівкової системи,  $\eta_{p,r,Q}$  – деформаційний коефіцієнт для коефіцієнтів проходження межі поділу шарів,  $k_i = \frac{d_i}{\lambda_{0i}}$  – зведена величина середньої товщини шару,  $m_i = \frac{L_i}{\lambda_{0i}}$  – зведена величина середньої товщини шару,  $m_i = \frac{L_i}{\lambda_{0i}}$  – зведена

## 1.2.2. Електрофізичні властивості плівкових гранульованих структур

З літературних даних [50-52] відомо, що значення питомого опору (ПО)  $\rho$  і термічного коефіцієнту опору (ТКО)  $\beta$  для плівкових та масивних зразків відрізняється майже на порядок. Нашою задачею було встановлення залежності  $\rho(T)$  для систем, в яких при термовідпаленні утворюється т.р. або гранульований плівковий сплав. Для цього були вивчені два типи систем: а) двошарові та тришарові зразки на основі Со і Ад або Аu, в яких при термообробці утворюється т.р.-(Ag, Co) і т.р.-(Au, Co) та можливе виділення гранул Co; б) двошарові та тришарові системи на основі Fe і Ag або Au, в яких при термообробці утворюється т.р.-(Ag (Au), Fe) і т.р.-(Au, Fe).

Аналізуючи літературні дані [53] стосовно ПО та ТКО, які будуть вивчатись у роботі, можна зробити кілька висновків, які стосуються зразків як на основі Со, так і на основі Fe. Більш тонкі плівки мають інтенсивне зменшення питомого опору на першому циклі нагрівання, що відповідає стадії заліковування дефектів кристалічної будови, що відбувається в інтервалі температур 350-450 К. В більш товстих плівках цей інтервал збільшується та зміщується в сторону більших температур. Величина ТКО залежить як від товщини плівки, так і від концентрації. Залежності, що характеризують систему з більшою концентрацією Со знаходяться вище над кривими із відповідно меншою концентрацією. При термовідпаленні залежність  $\beta(T)$ експоненціальний має характер. При температурах 300-450 К спостерігається різке зменшення значення ТКО (майже в 2 рази), а в області високих температур (600–750 К) криві виходять на насичення. В усіх випадках величина ТКО монотонно збільшується з ростом товщини, виходячи поступово на насичення і сягають асимптотики  $\beta_{\infty}$  (Au) = 1,45·10<sup>-3</sup> K<sup>-1</sup> і  $\beta_{\infty}$  (Fe) = 1,5·10<sup>-3</sup> K<sup>-1</sup>) при досягненні товщини 50-70 нм. На відміну від ТКО, значення питомого опору плівок падає з ростом товщини також виходять на насичення при  $\rho_{\infty}$  (Au) = 8·10<sup>-7</sup> Ом·м,  $\rho_{\infty}$  (Fe) = 9·10<sup>-7</sup> Ом·м. У випадку системи Au/Co/П при збільшенні концентрації атомів Co від 45 до 71 %  $\rho$  зменшується від 2,9·10<sup>-8</sup> до 0,9·10<sup>-8</sup> Ом·м, що можна пояснити поступовим розмиттям інтерфейсу і переходом до гранульованого сплаву. У таблиці 1.1 приведені зведені літературні дані питомого опору для гранульованих плівкових сплавів на основі Co або Fe та Ag або Au.

В роботі [54] представлені дані R(T) аморфних сплавів  $Co_{80-x}Fe_xB_{20}$ . Дослідження не виявили чіткої залежності  $\rho(T)$  та  $\beta(T)$  при зміні вмісту заліза в аморфних металевих сплавах (AMC). Залежності R(T) AMC  $Co_{80-x}Fe_xB_{20}$  при термовідпаленні від 300 К і вище мають лінійний характер і не змінюється при збільшенні концентрації заліза від 2 до 20 ат. %. Для низькотемпературної частини електроопору властива суттєва нелінійність.

Далі розглянемо літературні дані [55-57] тензорезистивних властивостей гранульованих плівкових сплавів. Для двошарових систем Ag/Co характерна відмінність І-го деформаційного циклу від наступних та вузький діапазон деформації. пружної Починаючи 3 другого деформаційного циклу спостерігається тенденція до стабілізації тензорезистивних властивостей. Крім того, виходячи з типових залежностей для одно- та двошарових зразків, можна зробити висновок, що діапазон пружної деформації для систем Ag/Co залежить від концентрації атомів Со плівка якого, яка має меншу межу пружності у порівнянні із плівками Ag. На залежностях  $\gamma_{l M}$  від  $\varepsilon_l$  для плівкової системи Аg/Со/П спостерігається ефект аномального збільшення коефіцієнта тензочутливості від деформації. Максимум на залежності миттєвого КТ відповідає межі переходу пружна / пластична деформація. Аналогічна нелінійність на залежностях  $\gamma_{l_M}$  від  $\varepsilon_l$  спостерігалася у роботах [55, 56].

Пояснити фізичну природу максимуму на залежності миттєвого коефіцієнта

Експериментальні дані електрофізичних властивостей (*ρ*, *β*) для гранульованих плівкових сплавів [53]

Зразок	с, ат. %	<i>р</i> •10 <sup>7</sup> , Ом∙м	$\beta \cdot 10^3$ , K <sup>-1</sup>
Au(50)/Co(40)/П	56	3	0,8
Au(20)/Co(20)/П	60	4	1
Au(8)/Co(20)/П	80	0,9	1,2
Аg(90)/Co(30)/П	50	0,4	1,8
Аg(20)/Co(10)/П	60	0,48	2,0
Au(30)/Fe(25)/П	54	4,5	1,6
Au(10)/Fe(20)/П	74	5	1,8
Аg(15)/Fe(25)/П	80	3,8	1,9

Таблиця 1.2

# Експериментальні дані механічних параметрів гранульованого сплаву Fe<sub>x</sub>Ag<sub>1-x</sub> [61]

Концентрація	Модуль Юнга, ГПа		Твердість, ГПа	
Fe, ат. %	невідп.	$T_{e} = 700 \text{ K}$	невідп.	$T_{e} = 700 \text{ K}$
0	91 ± 7	_	$1,6 \pm 0,1$	_
19	$101 \pm 3$	$105 \pm 11$	$4,4 \pm 0,2$	$2,4 \pm 0,2$
29	$107 \pm 4$	113 ± 9	$5,0 \pm 0,2$	3,2 ± 0,4
38	$119 \pm 4$	$122 \pm 8$	5,9 ± 0,3	3,9 ± 0,4
100	$213 \pm 4$	_	$6,1 \pm 0,2$	_

повздовжньої тензочутливості  $\gamma_{l_M}$  від деформації  $\varepsilon_l$  для двошарових плівкових систем можна проаналізувавши умову екстремуму (максимуму), яка отримується шляхом спрощення рівняння  $\frac{\partial \gamma_{l_M}}{\partial \varepsilon_l} = 0$ . Співвідношення для  $\gamma_{l_M}$  представлені в

[57]. Проведений аналіз вказує на те, що поява максимуму на залежності  $\gamma_{lm}$  від  $\varepsilon_l$  обумовлена нелінійною по деформації зміною питомого опору, яка відбувається при використанні застосованого у даній роботі динамічного режиму розтягування зразка, та зі структурними процесами, що протікають у плівкових системах при переході від пружної до пластичної деформації.

Ряд робіт [58-61] присвячений вивченню тензорезистивних властивостей шляхом дослідження твердості, визначенню величини модуля Юнга, коефіцієнта Пуассона. Так, в роботі [60] приводяться величини механічних параметрів тонких плівок Ag та Fe, а також мультишарів на їх основі. Твердість чистого Ag складає 1,33 ГПа, тоді як для Fe ця величина складає 7,08 ГПа і у мультишарі на основі Ag та Fe зростає із зменшенням періодичності. Максимальне значення 6,36 ГПа спостерігається при періодичності шарів товщиною 4 нм.

В статті [61] наводяться дані модуля еластичності та величина твердості для гранульованого сплаву  $Fe_xAg_{1-x}$  з концентрацією  $c_{Fe} = 19$ , 29 та 38 ат. %. Досліджувалися як щойносконденсовані зразки, так і зразки після термообробки до 700 К (табл. 1.2). Літературних даних стосовно вивчення КТ шляхом визначення відносної зміни опору гранульованих плівкових сплавів недостатньо. У даній дисертаційній роботі використовується методика дослідження тензорезистивних властивостей шляхом визначення відносної зміни опору при деформації.

# 1.3. Явище ГМО у плівкових гранульованих сплавах та магніторезистивні властивості плівкових систем на основі Со і Ag або Au та Fe i Ag або Au

Вивчення властивостей тонких феромагнітних плівок стало актуальним з появою магнітних носіїв інформації у першій половині минулого століття. Новий

етап інтенсивних досліджень властивостей магнітних плівок розпочався в 1980-х роках з відкриттям анізотропного магнітоопору (АМО) і, згодом, гігантського магнітоопору (ГМО) [62-64]. Особливістю цих досліджень став інтерес до багатошарових плівкових систем у вигляді мультишарів чи гранульованих сплавів на основі магнітних і немагнітних компонент, що чергуються або змішуються. Згодом такі структури отримали узагальнену назву матеріалів зі спін-залежним розсіюванням електронів, а початок 2000-х років [65, 66, 67] ознаменувався появою нового напряму розвитку електроніки – спінтроніки. Саме потреби стрімкого розвитку даного напряму виявили цілу низку нових невирішених задач у фізиці магнітних тонких плівок.

Вивчення магніторезистивних властивостей сплавів розпочалося ще з 90-х років минулого століття. Рядом авторів (А.Е. Берковіц (відкрив гранульований сплав) та ін.) [6-8] велися дослідження плівкових систем на основі Со і Си або Ад. Так, в роботах [6, 8] були розглянуті сплави на основі Со і Си з різною атомною концентрацією Со ( $c_{Co} = 19-28$  ат. %). Вимірювання проводилося в широкому інтервалі температур T = 10-100 К. Максимальні значення ГМО складають близько 20 % і отримані в системі з  $c_{Co} = 19$  ат. % при температурі 10 К. Величина ГМО залежить значним чином від концентрації. При  $c_{Co} = 19$  ат. % і T = 100 К величина ГМО становить 7 %, а в сплаві із  $c_{Co} = 28$  ат. % при тій самій температурі вимірювання — 2 %. Термообробка до  $T_e = 750$  К приводить до часткового збільшення значення ГМО. Так, у системі з  $c_{Co} = 19$  ат. % ГМО = 2 % при 300 К і різко зростає до 8 % при термовідпалюванні зразка протягом 60 хв при  $T_e = 750$  К, що пов'язано із утворенням гранульованого сплаву.

На даний момент рядом авторів констатується зовсім різна поведінка величини ефекту ГМО від середнього розміру гранул в залежності від умов осадження, режимів обробки, інших умов, що приводять до збільшення розміру гранул. Так, у роботі [68] показано еволюцію структури гранульованого сплаву  $Ag_{1-x}Co_x$  з концентрацією атомів Со від 9,4 до 19,4 ат. %. Термовідпалення до температури 600 К протягом години призводить до збільшення гранул Со в середньому від 3 до 6 нм, відмічається збільшення намагніченості зразків і значення величини МО.

Аналіз робіт, присвячених вивченню магнітоопору зразків, отриманих різними методами (див., наприклад [69-76]), показав, що при отриманні методами електрохімічного і високочастотного розпилення величина ГМО суттєво не змінюється. Як видно з рис. 1.6, величина ГМО лежить у межах від 1,5 до 7 % (всі вимірювання проводилися при температурі T = 300 K). Це пояснюється тим, що у всіх випадках відбувається утворення обмеженого твердого розчину з виділенням наногранул Со.

Суттєва зміна величини ГМО спостерігається в залежності від температури вимірювання та при переході від перпендикулярної (т.зв. СРР-геометрія – струм протікає перпендикулярно площині зразка) до паралельної (т. зв. СІРгеометрія – струм протікає паралельно площині зразка) геометрії протікання струму. Так, в серії робіт В. Пратта та ін. [77-79] на прикладі мультишарів на основі Со і Си або Ag та Fe і Cr, отриманих методом пошарової конденсації, було показано, що при вимірюванні у перпендикулярній геометрії величина ГМО не перебільшує 10 %, в той час як при паралельній геометрії досягає 40 % (температура вимірювання  $T_{gum} = 4,2$  К). Аналогічний результат був отриманий при дослідженні магніторезистивних властивостей гранульованих сплавів на основі Co і Ag у паралельній геометрії в роботах [80-84].

Також в статтях [7, 8] розглядаються плівкові сплави на основі Со та Ag. Залежність ГМО від  $T_e$  має аналогічний характер, який спостерігається в системі Со-Си. Термовідпалювання сплаву Co-Ag з концентрацією  $c_{Co} = 26$  ат. % при 473 К протягом години приводить до збільшення значення ГМО з 48 до 55 % (вимірювання проводилися при  $T_{eum} = 10$  K). Але термовідпалювання при 673 К приводить до зменшення значення ГМО до 37 % ( $T_{eum} = 10$  K) і до 15 % ( $T_{eum} = 300$  K). Таку поведінку можна пояснити звичайною температурною залежністю ГМО. Також автори роботи [8] приводять узагальнені дані залежності ГМО від концентрації атомів Со: найбільші значення спостерігаються у зразках із  $c_{Co} = 26$  ат. % (ГМО = 56 %), а найменші при  $c_{Co} = 40$  ат. % (ГМО = 12 %).



Рис. 1.6. Залежність ГМО при T = 300 К від величини магнітного поля для сплавів на основі Со і Ад, які були отримані різними методами: електрохімічне осадження (а), (в) та високочастотне розпилення (б). Із робіт [75], [76] та [85] відповідно



Рис. 1.7. Залежність величини ГМО від концентрації атомів Со при різних температурах вимірювання: • та ○ – із роботи [80]; □ та ■ – із роботи [81]

Широкий інтервал значень (від 1 до 40%) (рис. 1.7) пов'язаний із режимами термообробки [80] та зміною концентрації атомів Со [80, 81]. Розмірна залежність магнітоопору від індукції магнітного поля має нелінійний характер. Згідно даних [80] на концентраційних залежностях для плівкового сплаву на основі Ag та Co при T = 4,2 К величина ГМО зростає з 27 до 43 % при збільшенні загальної концентрації с<sub>Со</sub> в інтервалі від 14 до 37 ат.%. При подальшому збільшенні концентрації атомів Со відбувається різке зменшення ефекту і при  $c_{Co} = 60$  ат.% спостерігається мінімальне його значення (2 %). При температурі вимірювання 300 К спостерігається аналогічний характер залежності (максимум спостерігали при  $c_{Co} = 38$  ат.%, величина ГМО = 20%). Подібний характер концентраційної залежності отримали автори роботи [79]. У роботі [73] величина магнітоопору також змінюється в залежності від концентрації атомів Со, однак при цьому максимальне значення магнітоопору складає величину 4% при 300 К і 20 ат.% Со та 14% при 13 ат.% Со при 10 К, тобто має місце зміщення максиму на залежностях в сторону менших концентрацій у порівнянні з даними робіт [80-82].

У роботі [84] було проведено дослідження впливу температури відпалювання та температури підкладки ( $T_n$ ) на величину магнітоопору. Авторами цієї роботи було показано, що незалежно від  $T_n$  (дослідження проводилися при  $T_n = 300, 400$  K) максимум на концентраційній залежності магнітоопору відповідає  $c_{Co} = 22$  ат.% Со, найбільше ж значення ГМО було отримано при  $T_n \cong 300$  K і складає 9%. При відпалюванні в інтервалі температур від 300 до 900 K найбільше значення величини ГМО = 13% було отримано при  $T_e = 500$  K та  $c_{Co} = 22$  ат.% Со. Згідно [86] максимальна величина ГМО для гранульованого сплаву із загальною концентрацією 37 ат.% Со спостерігалася при температурі підкладки  $T_n \cong 370$  та 470 K (19,5%). Відпалювання до 670 K призводить до поступового зменшення величини ГМО до 9%.

На відміну від систем на основі Со та Au або Ag, які досліджуються вже довгий час, літературних даних стосовно плівкових систем на основі Fe та Au або Ag недостатньо для формування цілісної картини впливу структурно-фазового стану на магніторезистивні властивості. Більшість робіт цього плану присвячені або магніторезистивним властивостям, або вивченню структурно-фазового стану. роботи Л.М. Соколовські та ін. [16, 17] присвячені Так, вивченню магніторезистивних властивостей гранульованих сплавів на основі Fe та Au отриманих методом механічного сплавлення (вміст Fe у сплаві варіювався від 15 до 30 ат. %). Аналіз даних роботи [16] дозволяє встановити оптимальну концентрацію атомів магнітної компоненти для спостереження максимальної величини МО. Так, при концентрації 25 ат.% Fe MO = 4 % і відповідно при 15 ат. % Fe MO = 0,5 %. Також в іншій роботі цих авторів [17] був досліджений вплив температури на величину МО. Дослідження, які проводилися при 77 К показали збільшення значення МО до 5 % у зразку Fe<sub>25</sub>Au<sub>75</sub>.

У роботах [87-91] вивчаються магніторезистивні властивості гранульованого сплаву на основі Fe і Ag. У всіх випадках зразки отримувалися магнетронним методом. Робота [87] присвячена вивченню трьох типів структур: мультишари з гранульованим прошарком, гранульованим інтерфейсом та структура у вигляді мультишару. Найвищі значення МО спостерігаються у третьому випадку і складає 7,5 %. У роботі [87] також вивчалася мультишарова структура  $[Fe(2)/Ag(4)/Co(2)/Ag(4)]_3/\Pi$ . Перед дослідженням зразки термовідпалювалися на атмосфері при 573 К протягом 10 хв. МО такого зразка складає 0,2 %. Автори роботи [89] провели дослідження магніторезистивних властивостей плівкового сплаву Fe-Ag з концентрацією атомів Fe у діапазоні 14-64 ат. %. Максимальні значення МО (35%) спостерігалися у зразках із концентрацією 19-38% Fe, а мінімальні значення – 2 % при 64 ат. % Fe. У термовідпалених зразках до 673 К величина МО при відповідних концентраціях зростає до 55 %. У двох наступних роботах [90, 91] розглядаються сплави із  $c_{\text{Fe}} = 20$  та 54 ат. %, у яких МО має величину 6 та 0,5 % відповідно.

В основі різноманітних датчиків використовуються як чутливі елементи плівкові системи у вигляді мультишарів, спін-клапанів та гранульованих сплавів. На рис. 1.8 представлені дані типи структур. В таких системах велику роль відіграють СЗРЕ, намагніченість та оптичні властивості.



Рис. 1.8. Схематичне зображення плівкових структур: мультишар (а), спінвентиль (б), гранульований сплав (в). Із роботи [9]

Збільшення рівня чутливості датчиків магнітного поля було досягнуто використанням іншого виду плівкової структури – спін-клапану, який вперше був описаний авторами роботи [92] у 1991 році. В спін-клапані додатковий антиферомагнітний (ще його називають закріплюючим) шар додається зверху або знизу. У такому роді структури зникає необхідність у дії зовнішнього збудника для активації сенсора. Типові значення ГМО для спін-клапанів становлять 4–20 % [93].

Виготовлення зернистої структури шляхом молекулярно-епітаксіального росту плівок Co/Cu та Co/Ag у надвисокому вакуумі та підігрітій підкладці до 700 К був запропонований Паркіном та ін. у роботах [94, 95]. Даний спосіб отримання гранульованого сплаву дозволяє отримати високі значення MO (до 70 % при 4,2 К). На сьогодні все більш популярним стає використання як основи органічного матеріалу, наприклад, полімеру  $\pi$ -конфігурації та органічних напівпровідників. Вони мають слабку спін-орбітальну взаємодію, що дозволяє зробити можливим підтримання узгодженості спінів в кілька разів довше, ніж металів і напівпровідників. Крім того, органічний матеріал є дешевшим, легшим, механічно гнучким і простішим у використанні.

### Висновки до розділу 1

1. Аналіз літературних даних стосовно методів формування т.р. або т.р. з елементами гранульованого стану та магніторезистивних властивостей дозволяє зробити такі висновки:

 в залежності від умов отримання плівкових гранульованих сплавів та т.р. на основі Со або Fe та Ag або Au (тиск залишкових газів, методи осадження, час та швидкість конденсації) розміри кристалітів т.р., гранул Со або Fe відрізняються на порядок;

 магніторезистивні властивості суттєвим чином залежать від температури термообробки та температури, при якій проводяться вимірювання та геометрії вимірювання МО;

 на момент постановки задач наших досліджень був накопичений обширний експериментальний і теоретичний матеріал стосовно магнітних властивостей гранульованих плівкових матеріалів та фізичних процесів в них, хоча електрофізичні та магніторезистивні властивості залишилися маловивченими.

2. Літературний аналіз послужив методологічною основою для проведення наших досліджень взаємного зв'язку між електрофізичними і магніторезистивними властивостями та структурно-фазовим станом і умовами формування зразків.

#### **РОЗДІЛ 2**

### МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Аналіз літературних даних показує, що для більш коректного обговорення результатів комплексні дослідження бажано проводити властивостей тонкоплівкових систем. Так, дослідження тільки структурно-фазового складу та терморезистивних властивостей не дають повної картини та не можуть точно відповісти на питання щодо впливу т.р. або гранульованого стану на магнітні властивості досліджуваних плівкових систем. Тому проведення комплексу i3 дослідження магніторезистивних експериментів та магнітооптичних властивостей разом із структурними дадуть відповідь на питання стосовно впливу гранульованого стану та твердого розчину систем на основі Со або Fe та Ад або Аи на величину магнітоопору та ГМО.

Тому, саме з цією метою дану роботу можна поділити на декілька окремих етапів. На першому етапі отримували зразки та проводили електронномікроскопічні та електронографічні дослідження. Другий етап був присвячений дослідженню електрофізичних та магніторезистивних властивостей. Для цього використовувалися наступні методи та прилади:

- метод вакуумної пошарової та одночасної конденсації (прилад ВУП-5М);
- метод високовакуумної конденсації на обладнанні Інституту фізики
   Університету ім. Й. Гутенберга (Німеччина, м. Майнц);
- метод просвічуючої електронної мікроскопії та дифракції електронів (просвічуючий електронний мікроскоп ПЕМ-125К);
- вимірювання товщини методами кварцового резонатора та оптичної інтерферометрії;
- метод рентгеноспектрального ЕДС-аналізу (растровий електронний мікроскоп JEOL 6610LV);
- автоматизований комплекс [96] для дослідження тензорезистивних досліджень та магніторезистивних властивостей;

- метод МОКЕ для вивчення магнітооптичних властивостей.

Детально описані методики формування та дослідження гранульованих плівкових структур наведені нижче.

## 2.1. Методика отримання гранульованих плівкових сплавів [97, 110]

Аналіз робіт [69-76] свідчить про те, що для отримання плівкових сплавів використовується декілька способів. Це і традиційні методи, такі як одночасна вакуумна конденсація, випарування масивних сплавів, електрохімічне осадження, високочастотне випарування, а також метод отримання сплаву за допомогою пошарової конденсації компонент з термообробкою. Останній метод, як і більшість з перерахованих вище, має свої позитивні та негативні сторони. Однією з переваг є стабільність сплаву після термообробки, що дає можливість вивчати фізику процесів у плівкових зразках та застосовувати їх як чутливий елемент різноманітних сенсорів.

Але при дослідженні властивостей плівкових систем важливим питанням, яке потрібно враховувати, є матеріал підкладки. Він має задовольняти деяким вимогам. Найголовнішою вимогою – є забезпечення мінімальної шорсткості підкладки, адже на неї конденсується нанорозмірна плівка.

У роботі використовувалися вже стандартні ситалові підкладки для вивчення електрофізичних (терморезистивних) та магніторезистивних властивостей. Ситал – склокерамічний матеріал, отриманий за допомогою термообробки скла. Має тонкозернисту полікристалічну структуру та характеризується відносно високою твердістю (6,5–7 од. за шкалою Мооса) та механічною міцністю (250 МПа при згинанні), має електроізоляційні властивості та високу термічну стійкість (до 1300 К).

Для отримання та термообробки плівкових зразків на основі Со або Fe та Ag або Au застосовувалися методи пошарової та одночасної конденсації компонент. З цією метою використовувалися надвисоковакуумна установка (тиск залишкових газів 10<sup>-9</sup> Па), що знаходиться в Інституті фізики Університету ім. Й. Гутенберга (м. Майнц, Німеччина) та модифікована вакуумна установка ВУП-5М. Низький робочий тиск досягається використанням 3 типів насосів: форвакуумного, турбомолекулярного та магніторозрядного. Для обє'мі досягнення середнього вакууму В робочому використовувався комбінований безмасляний форвакуумний насос HiCube 80 Classic та турбомолекулярний HiPace 80 (виробництво Pfeiffer vacuum). Таке поєднання дало можливість досягти вакууму 10<sup>-5</sup>Па. Зовнішній вигляд даної установки з наносами зображений на рисунку 2.1. Для осадження срібла та золота користувалися методом резистивного випарування з вольфрамового випарника типу «гусарик», а для конденсації тугоплавких металів використовували електронно-променеву гармату. Швидкість осадження становила 1-5 нм/с, що дало можливість більш точно контролювати товщину зразків (d), яка вимірювалася двома методами: методом кварцового резонатора в процесі конденсації та оптичної інтерферометрії. Розрахунок товщини проводився за відповідними формулами:

$$d = \frac{N_a \cdot D_q}{D_f \cdot f_q^2} \cdot \left(f_q - f\right)$$

де  $D_q$  та  $D_f$  – густина кварцу і речовини, яка конденсується, відповідно;  $f_q$ , f – резонансна частота кварцу до і після конденсації металу;  $N_a = 1,668 \cdot 10^3 \, \Gamma$ ц·м – частотна стала для кварцової пластини.

$$d = \frac{\Delta}{l} \cdot \frac{\lambda}{2},$$

де *l* – відстань між інтерферометричними мінімумами;

 $\Delta$  – зміщення мінімумів;

 $\lambda$  – довжина зеленого світла ( $\lambda_3 = 534$  нм).





Рис. 2.1. Зовнішній вигляд високовакуумної установки (a), комбінованого насосу HiCube 80 Classic з HiPace 80 (б) та установки ВУП-5М (в)

Кожен з методів дає свою похибку  $\pm 0,1$  та 1 нм відповідно, яка залежить від конструктивних можливостей приладів. Зразки для дослідження електрофізичних (термо- і тензорезистивних), магніторезистивних властивостей та вивчення структурно-фазового складу отримували в одному технологічному циклі, що дало змогу отримувати більш точні результати для окремо взятої системи. Для електронографічних досліджень плівкові зразки конденсували на мікроскопічні мідні сіточки з наперед нанесеним шаром вуглецю із товщиною до 20 нм. Для отримання гранульованого плівкового сплаву свіжосконденсовані зразки піддавалися термообробці до 700, 800 та 900 К з стабілізацією протягом 30 хв. Швидкість нагрівання становила 10 К/хв.

# 2.1.1. Типова схема утворення т.р. та гранульованого сплаву у плівкових системах на основі Со або Fe та Ag або Au

В даному підрозділі розглянемо типову схему утворення т.р. та гранульованого сплаву на основі Со і Fe та Ag або Au. З діаграм стану [15] для масивних зразків відомо, що дані метали мають обмежену розчинність один в одному, але, як показали літературні дані, в плівкових зразках можуть утворюватися т.р. атомів Ag або Au у плівці Co або Fe з виділенням гранул Co [98, 99]. Деякі літературні дані [18, 100-103] свідчать про виділення в системі на



основі Fe та Ag або Au гранул Fe з ОЦК решіткою. Схема, що ілюструє даний тристадійний процес, представлена на рисунку 2.2. Розглянемо поетапно дану схему.

Рис. 2.2. Типова схема утворення т.р. та гранульованого сплаву у плівкових системах на основі Со або Fe та Ag або Au Коефіцієнт дифузії по межам зерен набагато більший за коефіцієнт дифузії в об'ємі ( $D_{M3} \ge D_{ob}$ ). Це означає, що утворення т.р. та гранул Со починається на межах зерен, а вже потім в об'ємі плівкового зразка. На початковій стадії фазоутворення відбувається із утворення т.р. Даний процес можна описати співвідношенням:

$$c_{mp} = c_{M3}^{\lim} + \Delta c_{M3} + c_{of},$$

де *c<sub>mp</sub>* – концентрація т.р.;

 $\Delta c_{_{\mathcal{M}3}}$  – концентрація магнітної компоненти;

 $c_{M3}^{\lim}$  – концентрація магнітної компоненти по межам зерен;

 $c_{o \delta}$  — концентрація магнітної компоненти в об'ємі.

Потім відбувається утворення гранул за рахунок надлишкової концентрації магнітної компоненти. Даний процес можна описати таким співвідношенням:

$$c_{_{\mathcal{P}}} = c_{_{\mathcal{M}3}}^{\mathrm{lim}} + \Delta c_{_{\mathcal{M}3}} + \Delta c_{_{\mathcal{O}\mathcal{O}}} + c_{_{\mathcal{O}\mathcal{O}}},$$

де  $c_{ep}$  – концентрація атомів магнітного елементу в гранулі.

Саме завдяки трьом останнім доданкам, які визначають концентрацію на межах зерен та в об'ємі, і формується т.р. та виділяються окремі гранули магнітного матеріалу.

### 2.1.2. Формування металевої ізолюючої підкладки та вимірювання КТ

Для дослідження тензорезистивних властивостей використовувалася спеціальна металева підкладка, попередньо покрита термостійким полімеромізолятором. Це дало змогу проводити термообробку даних підкладок до температури 800 К (температура утворення ГЦК-фази Со (окремих гранул Со в т.р.-(Ag, Co)) становить 674 К [96]). Далі ми більш детально опишемо принцип
формування металевої підкладки з ізолюючим покриттям.

Полістиролові підкладки, які використовувалися рядом авторів [104-109] для дослідження тензорезистивних властивостей тонкоплівкових зразків з певних причин не можуть бути використані для виконання поставлених у роботі задач – дослідження тензорезистивних властивостей плівкових гранульованих сплавів на основі Со та Ag або Au. Найбільшим недоліком є невелика температура плавлення ( $T_{nn} = 513$  K), хоча в роботі була необхідність проводити термообробку при T<sub>e</sub> > 700 К. Тому використовувалася спеціально підготовлена стальна підкладка, схематичне зображення якої представлене на рис. 2.3. Геометричні розміри становлять 7 см × 3 мм та товщина – до 2 мм. Поверхня підкладки проходила попередню підготовку, яка полягала у шліфуванні та знежиренні. На другому етапі стальну пластину покривали шаром спеціального діелектрика – рідкого полімеру з розчину поліамідкислоти з піромелітового діангідриду та 4,4-діамінодіфенілового ефіру (вміст сухого залишку 21 %), змішаної у об'ємному співвідношенні 1:5 з діметилфорамідом, який після висихання має набагато кращі характеристики, ніж полістирол. Після цього проводився процес імідізації полімеру – перехід поліїмідної плівки до



Рис. 2.3. Схематичне зображення металевої підкладки з нанесеним полімером: 1 – мідний контакт; 2 – стальна підкладка; 3 – полімер; 4 – плівка; 5 – місце під'єднання до мікрогвинта

твердого стану при кімнатній температурі протягом 24 год. з подальшим термовідпаленням до температури 400 К. Товщина діелектричного шару складає 1 мм. Дослідження тензорезистивних властивостей здійснювалося за допомогою мікрогвинта. Кріплення підкладки для дослідження КТ зображено на рисунку 2.3. Один край під'єднують до мікрогвинта, а інший – до нерухомої частини тримачів. Опір плівки в процесі деформації вимірювався за двоточковою схемою за допомогою прижимних мідних контактів.

#### 2.2. Методи дослідження кристалічної структури та фазового складу

#### 2.2.1. Метод просвічуючої електронної мікроскопії

Для дослідження кристалічної структури фазового та складу використовувалися методи електронної мікроскопії та електронографії. Хоча досліджувані системи на основі Со або Fe та Ag або Au і характеризуються повною незмішуваністю [14], але і літературні дані [13, 15] і власні експерименти вказують на утворення в даних системах т.р. на основі Со та Fe (наприклад, (Au, Co) або (Ag, Fe)) та виділенням гранул Со в матриці т.р. Тому електронографічні дослідження дали змогу проаналізувати технологічні умови (температура відпалювання, концентраційний вміст окремих компонент, швидкість компонент та ін.), при яких спостерігається фазоутворення. З цією метою ми використовували просвічуючий електронний мікроскоп ПЕМ-125К з максимальною роздільною здатністю 0,2 нм та збільшенням 1,3·10<sup>5</sup> крат. Методи ПЕМ дозволяє одержати інформацію про розміри, концентрацію та форму кристалітів (зерен); морфологію поверхні зразка; характер меж зерен (велико- чи малокутова); про дефекти кристалічної будови, такі, як вакансійні комплекси, дефекти пакування, двійники, лінійні та гвинтові дислокації, центри напружень.

Розшифровка електронограм здійснювалася вже за традиційною методикою, яка більш детально описана в роботах [111-112] та включає в себе

використання п'яти електронографічних співвідношень. Це закон Бреггів, співвідношення, що поєднує сталу приладу та діаметри дифракційних кілець, квадратичні форми та інші співвідношення. Але, по суті, в методиці розшифровки електронограм можна виділити 2 етапи. По-перше, потрібно визначити сталу приладу (*C*), яка використовується в основній формулі для розрахунку параметра кристалічної решітки. Як еталон використовували плівки Аl товщиною 30 нм.

$$C = D_{hkl}^0 \cdot d_{hkl}^0,$$

де  $D_{hkl}^0$  та  $d_{hkl}^0$  – діаметри кілець та міжплощинні відстані (довідкові дані) еталонного зразка.

Потім проводити розрахунок міжплощинних відстаней  $(d_{hkl})$  та параметра кристалічної решітки  $(a_{hkl})$ , попередньо вимірявши діаметри кілець на електронограмах від досліджуваних систем:

$$d_{hkl} = \frac{C}{D_{hkl}}.$$

Для різних кристалічних сингоній квадратичні форми мають різну форму запису. Вони показують з'язок між величинами  $d_{hkl}$ , параметрами  $a_{hkl}$ ,  $c_{hkl}$  та індексами Міллера (*hkl*) [112]:

– для кубічної сингонії:

$$\frac{1}{d_{hkl}^{2}} = \frac{h^{2} + k^{2} + l^{2}}{a_{hkl}^{2}},$$
(2.1)

для гексагональної сингонії:

$$\frac{1}{d_{hkl}^{2}} = \frac{4}{3} \frac{h^{2} + kh + k^{2}}{a_{hkl}^{2}} + \frac{l^{2}}{c_{hkl}^{2}}.$$
(2.2)

Параметр кристалічної гратки *а*<sub>*hkl*</sub> для кубічної та гексагональної сингоній можна виразити з формул (2.1) та (2.2) відповідно:

$$a_{hkl} = d_{hkl}\sqrt{h^2 + k^2 + l^2},$$
  
$$a_{hk0} = 2d_{hk0}\frac{\sqrt{3}}{3}\sqrt{h^2 + hk + k^2}, \quad c_{00l} = l \cdot d_{00l}.$$

В свіжосконденсованому стані плівкові системи Co/Ag та Co/Au мають гранецентровану кубічну решітку (ГЦК-фаза) + щільнопаковану фазу Co (ГЩП-Co). При термообробці до температури 700 K і більше у системі утворюється фаза т.р.-(Ag, Co) та (Au, Co) відповідно з ГЦК-фазою та виділенням гранул Co з ГЦК-решіткою (поліморфний перехід ГЩП-Co  $\rightarrow$  ГЦК- Co відбувається при температурі близькій до 700 K). В системі на основі Fe та Ag або Au окремо виділяються фази ОЦК-Fe та ГЦК-Ag та Au. При термовідпаленні у системі утворюється т.р.-(Ag, Fe) та (Au, Fe), спостерігаються окремі лінії від ОЦК-Fe. Також в даній системі при 800 K і вище утворюється фаза оксиду Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Типові електронограми та їх розрахунок, мікрокристалічна структура сплаву представлені на рис. 2.4 та в таблиці 2.1.

#### 2.2.2. Енергодисперсійний аналіз

Важливою частиною роботи був розрахунок концентрації компонент в системі. Адже після термообробки в плівкових зразках утворюється сплав без інтерфейсів. Тому потрібно розглядати залежність таких фізичних параметрів, як ПО, ТКО, МО і т.д. від концентрації (наприклад,  $c_{Co}$  чи  $c_{Fe}$ ) розрахованих в атомних відсотках. Теоретично розрахувати величину  $c_{mem}$  можна за відповідною формулою [113]:

$$c_{_{Mem}} = \frac{d_1 \cdot D_1 \cdot \mu_1^{-1}}{d_1 \cdot D_1 \cdot \mu_1^{-1} + d_2 \cdot D_2 \cdot \mu_2^{-1}},$$
(2.3)



Рис. 2.4. Приклад дифракційної картини системи Ag(10)/Co(5)/Ag(10)/Co(20)/П після конденсації (а) та після відпалювання до  $T_e = 700$  (б). В дужках вказана товщина в нм

Таблиця 2.1

#### конденсації та термовідпалювання до Т<sub>в</sub> = 700 К Невідп. $T_{e} = 700 \text{ K}$ № $d_{hkl}$ , $d_{hkl}$ , hkl hkl а, нм фаза а, нм фаза HM HM 0,236 0,408 111 ГЦК-Ад 0,235 0,407 111 т.р.-(Ад, Со) 2 0,250 100 ГЩП-Со 0,251 100 ГЩП-Со 0,217 0,215 0,406 200 т.р.-(Ад, Со) 3 0,204 200 0,203 0,408 ГЦК-Ад 0,351 ГЦК-Со 111 ГЩП-Со 0,192 4 0,191 101 101 ГЩП-Со — \_ 5 0,176 200 ГЦК-Со 0,352 5 0,144 0,407 220 ГЦК-Ад 0.144 0,406 220 т.р.-(Ад, Со) 6 0,124 0,251 110 ГЩП-Со 110 ГЩП-Со 0,123 0,356 311 ГЦК-Ад т.р.-(Ад, Со) 7 0,123 0,408 0,122 0,405 311 $\bar{a}$ (ГЦК-Аg) = 0,408 ± 0,001 нм; $\bar{a}$ (Ag, Co) = 0,407 ± 0,001 нм; а0 = 0,408 нм [114] $\bar{a}$ (ГЩП-Со) = 0,251 ± 0,001 нм; $\overline{a}$ (ГЩП-Со) = 0,251 ± 0,001 нм; $\bar{a}$ (ГЦК-Со) = $0.352 \pm 0.001$ нм. *а*<sub>0</sub>(ГЩП-Со) = 0,251 нм [114]

# Фазовий склад плівкової системи Ag(10)/Co(5)/Ag(10)/Co(20)/П після конденсації та термовідпалювання до T<sub>в</sub> = 700 К

де  $d_{1,2}$  – товщина шару плівки;

 $D_{1,2}$  – густина металів;

 $\mu_{1,2}$  – молярна маса.

Але для підтвердження теоретичних розрахунків використовувався енергодисперсійний (ЕДС) аналіз. Це аналітичний метод елементного аналізу твердої речовини, що базується на аналізі енергії емісії її рентгенівського спектру. Пучок електронів певної енергії збуджує атоми досліджуваного зразка. Кожному хімічному елементу відповідає характеристичне випромінювання з індивідуальними параметрами (енергія, довжина хвилі і т.д.). За аналізом енергетичного спектру такого випромінювання і роблять висновок щодо якісного та кількісного складу зразка.

Дослідження експериментальних зразків проводилося на растрових електронних мікроскопах РЕММА-102 та JEOL JSM-6610LV, які обладнані відповідними приставками. РЕММА-102 використовується для аналізу елементного складу речовини за довжиною хвилі або енергії квантів характеристичного рентгенівського випромінювання з подальшою обробкою за допомогою спеціального програмного забезпечення. Прискорююча напруга складала 20 кВ, діапазон збільшень – 1000 крат з часом експозиції запису спектру 100 с. На основі спектра визначалося положення піка на енергетичній шкалі, яке відповідало певному елементу (якісний аналіз). За значеннями інтенсивності піків (площа), що пропорційні концентрації атомів, проводився кількісний аналіз елементного складу зразка.

Растровий електронний мікроскоп JEOL JSM-6610LV є більш сучасним приладом. Роздільна здатність приладу складає 3 нм при прискорюючій напрузі (ПН) 30 кВ. Також діапазон ПН можна змінювати від 0,3 до 30 кВ. Діапазон збільшень  $\times 5 - \times 3 \cdot 10^5$  раз. Низьковакуумна модель JSM-6610LV [115] має в доповнення до звичайного режиму роботи ще й високовакуумний режим роботи. У такому режимі можна вивчати непровідні зразки без попереднього препарування, а потім аналізувати їх за допомогою

енергодисперсійного спектрометра. Евцентричний столик зразка не змінює поле зору та фокусування при обертанні і нахилі зразка. Конструкція столика дає змогу досліджувати поверхню зразка під різними кутами, глибину зразка та будувати тривимірні зображення. Забезпечується можливість одночасного використання трьох додаткових спектрометрів (наприклад, спектрометр з дисперсією за енергіями, по довжинах хвиль і детектор відбитих електронів).

На рис. 2.5 зображений приклад ЕДС спектру від плівкового зразка  $Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/\Pi$ , відпаленого до температури 800 К. Розрахунки, проведені за формулою (2.3), показали наступні результати:  $c_{Fe} = 53$  ат. %, що задовільно узгоджується з даними до рис. 2.5 і табл. 2.2, що були отримані при дослідженні зразка на приладі JSM-6610LV.

## 2.3. Обладнання для дослідження електрофізичних та магніторезистивних властивостей гранульованих плівкових сплавів [127]

### 2.3.1. Термічний коефіцієнт опору і коефіцієнт тензочутливості

Лише комплексні дослідження терморезистивних, тензорезистивних, магніторезистивних та магнітооптичних властивостей та електронографія можуть дати відповідь стосовно взаємозв'язку концентраційної залежності компонент в плівкових системах на основі Со або Fe та Ag або Au та утворення т.р. або гранул Co. Ці дані можуть бути використані для розвитку уявлень про фізичну природу твердого тіла у вигляді гранульованих сплавів та при побудові на основі вище перерахованих металів чутливих елементів різноманітного роду датчиків. Спочатку більш детально зупинимося на дослідженні терморезистивних властивостей.

Вивчення терморезистивних властивостей проводили у вакуумній камері установки ВУП-5М при тиску залишкових газів 10<sup>-4</sup> Па. Для цього плівка розмірами 1 см × 1 мм конденсувалася на ситалову підкладку 2 см × 1 см із наперед нанесеними контактними майданчиками. Низькоомні контактні май-



Рис. 2.5. Характер енергодисперсійного спектру від зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, термовідпаленого до 800 К, отриманий на приладі JSM-6610LV

Таблиця 2.2

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

Характеристики	Атомна концентрація	Атомна концентрація
спектру	<i>с</i> <sub>Fe</sub> , ат. %	<i>с</i> <sub>Ад</sub> , ат. %
Середнє значення		
концентрації	46,3	53,7
Станд. відхилення	0,3	0,3
Максимальне		
значення с	46,6	54,0
Мінімальне значення с	46,0	53,4

данчики складалися з двох шарів металів. Спершу на підігріту підкладку конденсували тонку, товщиною близько 5 нм, плівку Сг для кращої адгезії, а потім відносно товстий (до 2 мкм) шар Cu. Покращення контакту «плівка / контакт» двошарової плівки Cu/Cr відбувалося шляхом сходинкоподібного осадження шарів металів. При отриманні залежності зразків від температури використовувався питомого опору пристрій, двох зображений рис. 2.6. В результаті стабілізаційних циклів на «нагрівання ↔ охолодження» при постійній швидкості 8-10 К/хв були отримані залежності R(T). Потім, використовуючи співвідношення  $\beta = \frac{1}{R_{u}} \frac{\Delta R}{\Delta T}$ проводився розрахунок величини ТКО. Для вимірювання електричного опору застосовувався високоточний цифровий вольтметр АРРА-109 з похибкою вимірювання опору ±0,06 %. Температуру контролювали за допомогою хромель-алюмелевої термопари та цифрового вольтметра UT-70B, що забезпечувало прийнятну точність ± 1 К.

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



Рис. 2.6. Схема пристрою для відпалювання плівкових зразків зверху (а) і збоку (б): 1 – вольфрамова спіраль; 2 – столик; 3 – екрануючий кожух; 4 – притискні контакти; 5 – зразок; 6 – термопара

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

У цій частині роботи більш детально зупинимося на використанні першого підкладок дослідження типу автоматизованого комплексу та ДЛЯ тензорезистивних властивостей. Перед використанням даних підкладок, їх попередньо підготовлювали. На полістиролову відшліфовану та знежирену підкладку розміром 7 см× 2 см × 0,4 мм спочатку наносились мідні низькоомні контактні майданчики, а потім осаджувалася плівка. Вимірювання опору проводили за чотириточковою схемою за допомогою позолочених контактів. Для отримання більш точних експериментальних даних при дослідженні тензорезистивних та магніторезистивних властивостей використовувалися дослідження відповідних автоматизовані комплексні системи лля характеристик. Автоматизований комплекс, який більш детально описаний в роботі [116], складається з наступних основних частин (рис. 2.7):

1. Система контролю та вимірювання товщини плівки, що конденсується (включає в себе кварцеву пластину, зовнішній генератор та частотомір);

2. Система зворотного зв'язку комп'ютера з вакуумною установкою;

3. Персональний комп'ютер з відповідним програмним забезпеченням, розробленим в середовищі програмування LabView.

Більш детально зупинимося на другому блоці, який зображений на рис. 2.7а. Основу автоматизованої системи складає 8-канальний 16-бітний сигма-дельта АЦП ADAM-4018, з допомогою якого за чотириточковою схемою вимірювався опору зразків, перетворювач інтерфейсів USB  $\rightarrow$  RS 232/422/485 ADAM-4561, асинхронний двигун типу Д-219П1УЗ та web-камера. Управління автоматизованим комплексом здійснювалося з допомогою комп'ютера під управлінням програми, розробленої в середовищі програмування LabView 2012 з використанням модуля машинного зору LabView Vision Development Module 8.2.





Рис 2.7. Автоматизований комплекс для дослідження тензорезистивних властивостей: структурна схема автоматизованої системи (а); інтерфейс програми (б)



Рис 2.8. Приклад залежностей  $\Delta R / R$ ,  $\gamma_{lm}$  і R від  $\varepsilon_l$  (а) та залежністі  $\gamma_{lm}$  від  $\varepsilon_l$ для І деформаційного циклу (б) для зразка Со(70)/П.  $\overline{\gamma}_{lm}$  – середнє значення коефіцієнта  $\gamma_{lm}$ 

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

Дана система дозволяє проводити дослідження тензоефекту в динамічному або статичному режимах зі швидкістю деформації від 0 до 0,1 %/с. Вона також дозволяє дослідити робочий ресурс плівкових зразків як чутливих елементів тензодатчиків. Характерна залежність КТ від деформації для плівки Со товщиною 70 нм представлена на рис. 2.8.

#### 2.3.2. Магніторезистивні властивості

Тільки наявність ГМО або його ознак може бути підтвердженням наявності спін-залежного розсіювання електронів. Тому в даній роботі велика увага приділяється дослідженню магніторезистивних властивостей.

Вимірювання МО проводять у двох геометріях: паралельній геометрії (СІР – current-in-plane –конфігурації), коли напрям протікання струми паралельний до площини інтерфейсу та перпендикулярній геометрії (СРР – currentperpendicular-to-plane – конфігурації). В останньому випадку напрям протікання струму ортогональний (перпендикулярний) до площини плівки. На вибір геометрії вимірювання вплинули, головним чином, розміри зразка. Через малу довжину, а, отже, і невеликий опір, довелося відмовитися від СРР-конфігурації, тому вимірювання проводилися лише в паралельній геометрії.

Експериментально робота виконувалася з допомогою автоматизованого комплексу для дослідження магніторезистивних властивостей, який більш детально описані в роботі [117].

Автоматизований комплекс складається з таких основних частин:

- 1. електромагніту, магнітне поле якого складає  $\approx 500$  мТл;
- 2. для живлення котушок використовувався уніполярний блок Philips PM 2811;
- 3. мультиметр для вимірювання опору Keithley 2000 Digital;
- 4. 12-бітний АЦП-ЦАП NI USB 6008;
- 5. система реле для зміни полярності магнітного поля;
- 6. модуль повороту зразка.

Зупинимося більш детально на деяких ключових приладах даної системи. А саме, розглянемо уніполярний блок живлення Philips PM 2811 та мультиметр Keithley 2000 Digital [118]. Мультиметр Keithley 2000 в нашій роботі використовувався для вимірювання електричного опору. Для цього передбачені дві схеми: двоточкова та чотириточкова. Ми користувалися чотириточковою схемою вимірювання електричного опору. Це має декілька переваг. По-перше, значення опору отримуємо більш точні, а по-друге, зникає необхідність використовувати додатковий блок живлення для пропускання струму через зразок.

Кроковий двигун дозволяє точно позиціонувати тримач контактів зі зразком у магнітному полі. Механіка реалізована за допомогою алюмінієвого валу, на якому закріплено шестерню, що забезпечує зменшення передачі одиничного кута повороту в 3 рази і відповідає куту повороту в 1°. 8 точкових пружинних позолочених контактів рівномірно розміщені та закріплені на тримачі, який виготовлено із пластини склотекстоліту товщиною 1,5 мм. Для міцного фіксування точкових контактів на двосторонній пластині було використано методику виготовлення печатних плат. У процесі формування шаблону та подальшому травленні були сформовані мідні доріжки шириною 1 мм. Провідники, що з'єднують точкові контакти із системою вимірювання опору відводяться від тримача контактів за допомогою тонких гнучких мідних провідників, що дозволяє без перешкод обертати зразок. Всі елементи модуля виконано з немагнітних матеріалів для виключення впливу магнітного поля на механізм повороту та тримач зразка з контактами. Досліджуваний зразок розміщувався поряд зі стаціонарно встановленим датчиком Холла, що дозволяє зменшити похибку та підвищити точність експериментальних даних.

Для стабільного керування магнітним полем між осердям електромагніту необхідно встановлювати відповідні дискретні значення напруг і струмів. Для цього ми користувалися блоком живлення Philips PM2811 [119], який і дозволяє задати необхідні значення напруги та струму та записати їх у своєрідну таблицю. Також в даного приладу є функція збереження цих значень в енергонезалежній пам'яті. Ця перевага даного приладу дозволяла один раз задати відповідні значення струму та напруги, а потім весь час ними користуватися. Для автоматизованої системи [117] було створено таку таблицю з 999 елементів (це максимально допустима кількість значень, які може запам'ятати даний прилад). Блок живлення працював в режимі стабілізації напруги з кроком 0,05 В. Значення розподілені наступним чином. Початок – 0 В, а максимальне значення – 5 В відповідало індукції магнітного поля 450 мТл. Дані записувалися в регістрах 1-500. А від максимального значення (25 В) і до 0 В – в регістрах 501-999. Управління блоком живлення здійснюється за допомогою імпульсів, які подавалися на тригерні входи з цифрових виходів NI USB 6008.

Зразок розміщується між осердями електромагніту та складається зі столика для розміщення зразка, тримача контактів та крокового двигуна, який використовується для повороту зразка відносно напрямку дії магнітного поля. Позолочені контакти розміщувалися таким чином на контактотримачі, що дозволяє змінювати геометрію протікання стуму відносно прикладеного зовнішнього магнітного поля без зміни положення плівкового зразка. Вимірювання опору проводиться за стандартноючотири точковою схемою з паралельною геометрією протікання струму.

Особливістю комплексу є автоматичне вимірювання магнітоопору в різних геометріях: повздовжній, поперечній та перпендикулярній. На рис. 2.9



Рис. 2.9. Схеми поздовжньої (а), поперечної (б) та перпендикулярної (в) геометрій вимірювання магнітоопору

схематично зображені геометрії вимірювання МО. Працює автоматизований комплекс під управлінням програми розробленої у середовищі графічного програмування LabVIEW 2012. Панель управління наведена на рис. 2.10. Типовий графік залежності МО від прикладеного зовнішнього магнітного поля представлений на рис. 2.11.

Магніторезистивні властивості характеризуються величиною магнітоопору (MO), анізотропного магрітоопору (AMO), чутливістю до магнітного поля ( $S_B$ ), коерцитивною силою ( $B_C$ ), величиною залишкової намагніченості ( $B_R$ ) та поля насичення ( $B_S$ ). Величина MO визначалася за співвідношенням:

$$\frac{\Delta R}{R(B_S)} = \frac{(R(B) - R(B_S))}{R(B_S)},$$
(2.4)

де R(B) – поточне значення опору плівкової системи в магнітному полі;  $R(B_s)$  – опір зразка у полі насичення  $B_s$ .

При виборі плівкових систем як елементної бази наноелектроніки значну роль, крім величини магнітоопору, відіграє величина поля насичення *B<sub>s</sub>*.

Найменше значення  $B_s$  досягається в спін-клапанних структурах за рахунок різниці величин коерцитивної сили магнітних шарів, різних за товщиною або виконаних із різних матеріалів. В розглядуваних нами мультишарах на основі феромагнетика (Fe, Co) і немагнітного металу (Cu, Ag, Cr) поле насичення може бути зменшене в декілька разів шляхом термообробки зразка (при цьому



Рис. 2.10. Автоматизований комплекс для дослідження магніторезистивних властивостей: структурна схема автоматизованої системи (а); зовнішній вигляд столика для плівкового зразка (б)



Рис. 2.11. Приклад залежностей МО від прикладеного зовнішнього магнітного поля для плівкової системи Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П для повздовжньої(а) та перпендикулярної (б) геометрії

чим більша  $T_{e}$ , тим помітніше падіння величини  $B_{s}$ ). Але при цьому необхідно також враховувати і падіння величини МО з ростом температури відпалювання, яке може бути як незначним [120-124], так і досягати десятки разів [125, 126]. Тому в деяких роботах [122, 128], присвячених застосуванню ГМО-структур в сенсорній техніці, вводять поняття чутливості плівкової системи до магнітного поля, максимальне значення якої визначається за формулою:

$$S_B = \frac{\left| \left( \Delta R / R(B_S) \right)_{\text{max}} \right|}{B_S}, \qquad (2.5)$$

де  $(\Delta R / R(B_S))_{max}$  – максимальне значення МО;  $B_S$  – індукція поля насичення. Величина  $S_B$  вимірюється у %/Тл і дає уявлення про співвідношення величин магнітоопору та поля насичення.

Явище зменшення величини МО при термообробці багатошарових систем на основі Со та Ag або Au можна пояснити появою нового ефекту – AMO, суть якого можна пояснити наступним чином. При температурах вище 550 К [129] в даних системах відбувається різкий ріст кристалітів Ag або Au. Це обумовлює появу несуцільного прошарку. Таким чином, з'являється обмінний зв'язок між шарами Со. Результатом цього і є поява явища AMO. Співвідношення для розрахунку величини AMO приведене нижче:

AMO = 
$$\frac{1}{3}\rho_{||} + \frac{2}{3}\rho_{\perp}$$
, (2.6)

де  $\rho_{\parallel}$  та  $\rho_{\perp}$  – питомий опір при орієнтації зразка паралельно та перпендикулярно магнітному полю, відповідно.

На практиці даний ефект проявляється дуже слабко. Типовими величинами АМО є декілька десятих процента. Даний ефект використовувався науковцями до відкриття явища ГМО. Детально магніторезистивні властивості розглянуті в розділі 4.

#### 2.3.3. Магнітооптичні властивості

Ще однією з методик дослідження магнітних властивостей дослідження гранульованих плівкових сплавів є вивчення магнітооптичних властивостей методом магнітооптичного ефекту Керра (МОКЕ). Це зміна поляризації світла, відбитого від поверхні зразка, при поміщенні останнього в магнітне поле. Даний метод широко застосовується при дослідженні доменної структури матеріалів, а також використовується в магнітних мікроскопах для вивчення магнітної топології поверхні.

Для дослідження магнітооптичних властивостей гранульованих плівкових сплавів використовувалася автоматизована установка для вимірювання МОКЕ, зовнішній вигляд якої зображений на рис. 2.12. Даний комплекс розроблений співробітниками лабораторії мультишарів та наноструктур Інституту фізики Словацької академії наук [130].

Основні її вузли схематично зображені на рис. 2.13. Як джерело світла служить гелій-неоновий лазер з довжиною хвилі  $\lambda = 632.8$  нм та потужністю P = 7 MBт. Лазерний промінь проходить через телескоп *T*, в результаті чого його діаметр збільшується з 0,81 мм до 5 мм та поляризується поляризатором *P*. В системі присутній дільник променя BS, який розділяє промінь на дві складові: сигнальний, що фокусується на зразку лінзою FL1, та еталонний, який направляється дзеркалом М через лінзу RFL на вхід диференційованого детектора. Після того, як сигнальний промінь відбився від зразка, він проходить через лінзу LF2, аналізатор А та попадає на сигнальний вхід детектора. Дзеркало RM використовують для того, щоб направити промінь на CCDкамеру. Магнітне поле в системі створюють електромагнітом ЕМ з допомогою блока біполярного живлення. контролюється датчиком Хола H. ЩО Переміщення зразків та вибір ділянки для дослідження відбувається за допомогою столика з п'єзоприводом (див. рис. 2.13).

Приладом для прямого дослідження магнітних властивостей, який

використовувався у роботі – вібраційний магнітометр VSM-7312 (виробництво фірми Lake Shore Cryotronics Inc). Зовнішній вигляд наведено на рис. 2.14 та знаходиться в лабораторії Університету Лотарингії (м. Нансі, Франція).

Магнітометр дає можливість експериментально дослідити магнітний момент і його кутові залежності в діапазоні 10<sup>-10</sup>-1 Дж/Тл в широкому інтервалі температур: 4,2–1273 К для всіх типів матеріалів (діамагнетики, парамагнетики, феромагнетики, антиферомагнетики, феримагнетики, магніто-оптичні матеріали, анізотропні матеріали): об'ємні (масивні), порошки, плівки, монокристали, рідини, тощо) за допомогою комп'ютерно-автоматизованого комплексу. За допомогою магнітометра можна також отримувати петлі гістерезису та їх параметри. Завдяки високій чутливості магнітометра (вона становить 10<sup>-10</sup> Дж/Тл) можна методом вимірювання магнітної сприйнятливості дослідити особливості електронної структури фермієвських носіїв струму і, зокрема, ефекти непараболічності зон, тобто неквадратичності енергетичного спектру носіїв струму для вузькозонних матеріалів з різним рівнем заповнення зон. За допомогою магнітометра можна також отримувати петлі гістерезису та досліджувати магнітні характеристики матеріалу ( $B_C, B_S, B_R$ ).

Принцип роботи даного приладу полягає у наступному. Досліджуваний зразок, поміщений в однорідне магнітне поле, приводиться в коливальний рух з постійною частотою і амплітудою. Магнітне поле, що створюється в розташованих поблизу вимірювальних котушках, пропорційне магнітному Реєструється залежність магнітного віл моменту зразка. моменту намагнічування поля. Таким чином, вимірюється крива намагнічування, петля гістерезису, температурні залежності від намагніченості. Для феримагнетиків визначити намагніченість насичення, залишкову намагніченість, можна температуру Кюрі та інші характеристики.

Крім того, дослідження МОКЕ для плівкових зразків проводилося на установці, яка знаходиться на базі Інституту фізики Університету ім. Й. Гутенберга (м. Майнц, Німеччина). Експеримент проводили в двох геомет-



Рис. 2.12. Зовнішній вигляд установки для вимірювання магнітооптичного ефекту Керра



Рис. 2.13. Схематична конструкція та розміщення оптичних елементів автоматизованої установки для вимірювання магнітооптичного ефекту Керра [111]: Т – телескоп; Р – поляризатор; М – дзеркало; BS – дільник променя; RM – рухоме дзеркало; А – аналізатор; SFL, FL1 та FL2 – фокусуючі лінзи; S – зразок; Н – датчик Холла; EM – електромагніт; РТМ – п'єзостолик. Із роботи [130]





ріях: поздовжній та перпендикулярній. Установка схематично представлена на рис. 2.15.

В основі принципу роботи даної установки лежать два магнітооптичні ефекти. Це ефект Керра, суть якого полягає у відбитті від зразка поляризованого світла та ефекту Фарадея – зміна поляризації світла при проходженні крізь середовище.

В процесі вимірювання будується залежність кута повороту Керра, що визначається за допомогою модулятора Фарадея від індукції магнітного поля. Для генерування світлового пучка використовувався напівпровідниковий лазер фірми «Voltcraft Labornetzgerät» TNG 30 з довжиною хвилі 670 нм. Промінь, що вийшов з поляризатора проходив через збиральну лінзу та відбивався від поверхні зразка, тим самим еліптично поляризувався. Потім світловий пучок проходив через фокусуючу лінзу та модулятор Фарадея, що представляв собою осердя з оптичного скла розміщене у соленоїді. Поле соленоїда повертає площину поляризації на кут  $\Theta_K$ , що пропорційний до струму, який протікає через модулятор Фарадея. Струм модулятора контролювався підсилювачем компанії EG&G Princeton Applied Research. Таким чином, поворот кута Керра залежить від струму та напруги на модуляторі Фарадея і саме ці параметри ми фіксували та отримували залежність I(U). Параметри котушок магнітів були наступними: максимальне магнітне поле  $B_{max} = 150$  мТл та максимальне значення струму –  $I_{max} = 5,5$  А. Для перерахунку величини



Рис. 2.15. Схематичне зображення установки для вимірювання магнітооптичного ефекту Керра у повздовжній (а) та перпендикулярній (б) геометріях

Д

a

А

ПС



Рис. 2.16. Геометрії вимірювання МОКЕ

струму *I* в кут  $\Theta_K$  та напруги *U* в поле *B* скористаємося співвідношеннями:

$$\Theta_K = A + B \cdot \operatorname{arctg}(C \cdot U),$$

де A, B та C = const, що характеризують лінзу циліндра Фарадея. В даному випадку A = 0; B = 35,5 та C = 0,195;

$$F = K + L \cdot \operatorname{arctg}(M \cdot I),$$

де K, L та M = const, що характеризують лінзу циліндра Фарадея, де K = 0; L = 165 та C = 0,237.

У перпендикулярній геометрії вимірювання МОКЕ зразок розташовувався так, щоб його поверхня була перпендикулярна до ліній магнітного поля. Пучок світла проходив через отвір в одній з котушок, відбивався від площини плівки та виходив через той самий отвір. Потім світло відбивалося під кутом 90° та потрапляло на циліндр Фарадея (рис. 2.15б). Необхідною умовою вимірювання методом МОКЕ є контроль кута між аналізатором та поляризатором. Він повинен складати 90°. Контроль здійснюється за допомогою осцилографа. Для визначення еліптичності світла перед циліндром Фарадея ставиться чвертьхвильова лінза.

Дослідження магнітоопору та МОКЕ проводили в різних геометріях вимірювання. В залежності від методу дослідження здійснювався поворот зразків на різні кути  $\alpha$  та  $\varphi$ . Представлена методика дала змогу побудувати залежності  $B_C$  від кута повороту зразка  $\alpha$ .

#### Висновки до розділу 2

1. Для комплексного дослідження електрофізичних та магніторезистивних властивостей, особливостей структурно-фазового стану т.р. з елементами

гранульованого стану на основі феромагнітних та благородних металів доцільно використовувати наступні методи:

просвічуюча електронна мікроскопія та електронографія;

метод рентгеноспектрального ЕДС-аналізу;

метод МОКЕ для вивчення магнітооптичних властивостей.

2. Використовуючи метод пошарової конденсації компонент, з наступним термовідпалюванням плівкових зразків до  $T_e = 700-900$  К, яка описана в даному розділі, було отримано температурно стабільні т.р. з елементами гранульованого стану на основі Со і Fe тa Ag або Au.

3. Використання двох видів підкладок (металевої з нанесеним попередньо шаром полімеру та полістиролової підкладки) дозволяє проводити дослідження тензорезистивних властивостей як щойносконденсованих плівкових структур, так і термовідпалених зразків до *T<sub>e</sub>* = 700-900 К, при якій, відбувається утворення т.р. з елементами гранульованого стану.

4. Використовуючи методи дослідження термо-, тензо- та магніторезистивних властивостей і МОКЕ був проведений аналіз залежності між структурно-фазовим станом та електрофізичними властивостями т.р. з елементами гранульованого стану Вимірювання магніторезистивних властивостей при різних кутах повороту та в трьох геометріях дало змогу виявити наявність / відсутність магнітної анізотропії та ефекту явища ГМО.

5. Автоматизовані комплекси, що використовувалися в роботі для дослідження тензорезистивних та магніторезистивних властивостей дали змогу більш точно і якісно поставити та виконати експеримент.

#### РОЗДІЛ З

## ФОРМУВАННЯ ПЛІВКОВИХ ТВЕРДИХ РОЗЧИНІВ НА ОСНОВІ МАГНІТНИХ І БЛАГОРОДНИХ МЕТАЛІВ

Плівки на основі Со або Fe i Ag або Au – основні складові при формуванні твердих розчинів та гранульованих плівкових сплавів. З робіт [69-76, 77-79] відомо, що на формування даних структур впливає значна кількість фізичних умов. Головними можна назвати такі: концентрація компонент у системі, температура термообробки, тиск залишкових газів, час термообробки та інші.

Даний розділ присвячений вивченню процесів фазоутворення плівкових систем на основі феромагнітних (Со, Fe) та благородних (Ag, Au) металів, утворення на їх основі т.р. в залежності від термообробки. Спочатку будуть розглянуті властивості одношарових плівок, а потім – двошарових плівкових систем та плівкових сплавів.

#### 3.1 Фазовий стан одношарових плівок Со, Fe, Ag та Au [133, 135]

Хоча фазовий склад і структура одношарових плівок Со, Fe, Ag і Au вже вивчені достатньо добре [13, 111], але у даній роботі також приділяється певна увага даному питанню. Це обумовлене високою чутливістю складу плівкових зразків до умов отримання. Тому доцільно буде спочатку описати властивості одношарових плівок, а потім переходити до двошарових плівкових систем та плівкових сплавів.

Аналіз електронограм (рис. 3.1) показав, що плівки Ag та Au в щойно сконденсованому стані при 300 К мають гранецентровану кубічну структуру (ГЦК). Подальша термообробка до 700, 800, 900 К температур не приводить до зміни фазового складу, який у всіх випадках вивчався при T = 300 К. Відбувається лише інтенсивний процес рекристалізації, збільшення розмірів окремих кристалів у 5–6 раз (з 10–15 нм до 60–70 нм), що можна чітко спос-



Рис. 3.1. Кристалічна структура одношарових плівок Au(25) (а, б), Ag(20) (в, г), Co(20) (д, е) Fe(20) (є, ж) у невідпаленому стані (а, в, д, є) та після відпалювання до 800 К (б, г, е, ж)

## Таблиця 3.1

## Фазовий склад одношарових плівок Au, Ag, Co та Fe у свіжосконденсованому

Плівка	№ п/п		$T_e = 30$		$T_{e} = 800 \text{ K}$				
ПЛІВКА	JN≌ 11/11	<i>I</i> , в.о.	$d_{ m hkl}$ , нм	hkl	а, нм	<i>I</i> , в.о.	$d_{ m hkl}$ , нм	hkl	а, нм
	1	ДС	0,235	111	0,407	ДC	0,235	111	0,407
	2	cep	0,202	200	0,404	cep	0,203	200	0,406
	3	cep	0,143	220	0,404	cep	0,144	220	0,407
Au(25)/Π	4	С	0,122	311	0,405	cep	0,123	311	0,408
	5	СЛ	0,093	331	0,405	сл	0,094	331	0,410
		$\overline{a} = 0,4$	$05 \pm 0,00$	1 нм		ā	- 0 408	+0.001	нм
		$a_0 = 0,$	408 нм [1	14]			- 0,100	- 0,001	
	1	ДC	0,235	111	0,407	ДC	0,236	111	0,409
	2	cep	0,204	200	0,408	cep	0,204	200	0,408
	3	cep	0,144	220	0,407	cep	0,144	220	0,407
Ag(20)/Π	4	cep	0,123	311	0,408	cep	0,124	311	0,409
	5	СЛ	0,093	331	0,405	сл	0,094	331	0,410
		$\overline{a} = 0,4$	$07 \pm 0,00$	$\overline{a} = 0,409 \pm 0,001$ нм					
		$a_0 = 0,$	408 нм []						
	1	СЛ	0,215	100	0,251	сл	0,218	100	0,253
	2	ДC	0,204	111	0,353	ДC	0,207	111	0,358
	3	ДC	0,192	101	0,250	ДC	0,195	101	0,252
	4	cep	0,177	200	0,354	cep	0,178	200	0,356
Co(20)/11	5	cep	0,125	220	0,354	cen	0 126	220	0,356
				110	0,251	ччр	0,120	110	0,251
	6	СЛ	0,106	311	0,352	сл	0,108	311	0,358
	<i>ā</i> (ГЦК-	-Co) = (	$0,353 \pm 0,$	001 н	м, ā (ГІ	ЦП-Сс	(0) = 0,25	$1 \pm 0,00$	003 нм;
	$a_0$	(ГЦК-С	Co) = 0.35	55 нм;	а <sub>0</sub> (ГЩ	П <b>-</b> Со) :	= 0,251 1	нм [114	]
	1	ДС	0,203	110	0,287	ДС	0,203	111	0,287
	2	cep	0,143	200	0,286	cep	0,144	200	0,288
Fe(20)/П	3	С	0,118	211	0,289	С	0,118	220	0,289
	4	СЛ	0,102	220	0,288	сл	0,102	311	0,288
		$\overline{a} = 0,2$ $a_0 = 0,$	288 ± 0,00 287 нм [1	$\overline{a} = 0,288 \pm 0,001$ нм					
ДС – дуже сильна, С – сильна, сер – середня, сл – слабка									

стані та після термовідпалювання до *Т<sub>в</sub>* = 800 К

терігати на рис. 3.1, а-г. Також термовідпалення приводить до деякого збільшення параметра кристалічної ґратки від a = 0,407 нм при  $T_{e} = 300$  К до a = 0,409 нм при  $T_{e} = 800$  К для плівки Ад (табл. 3.1).

Розшифровка електронограм показала, шо плівки Co В свіжосконденсованому стані мають дві модифікації: низькотемпературну гранецентровану цільнопаковану (ГЩП) фазу з параметром кристалічної гратки a = 0,248 нм та c = 0,252 нм та високотемпературну ГЦК, кристаліти якої можуть бути областями ДП в ГЩП фазі. Наявність фаз або ГЦК, або ГЩП, або ГЦК + ГЩП в плівкових зразках від залежить загальної товщини. Експериментальні результати узгоджуються з роботами [131, 132].

Типові електронограми та мікроструктура одношарових плівок ОЦК-Fe представлені на рис. 3.1є, ж. Можна лише відзначити, що плівки Fe мають ОЦК фазу із середнім параметром гратки до відпалювання  $\overline{a} = 0,287$  нм, який дещо збільшується після відпалювання при  $T_e = 700$  К до  $\overline{a} = 0,288$  нм ( $a_0 = 0,287$  [114]). Для плівок Fe, які пройшли термообробку при вищих температурах, у залежності від їх товщини, електронографічно поряд з ОЦК-Fe, фіксуються лінії домішкової фази Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.

## 3.2. Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем на основі Со і Ag або Au [135]

#### 3.2.1. Багатошарова плівкова система на основі Со і Ад

Розглянемо більш детально фазоутворення в плівковій системі на основі Со і Ag. В роботі були досліджені як двошарові системи Co/Ag та сплави Co-Ag, так і тришарові Co/Ag/Co, де Ag виступає прошарком між двома магнітними шарами, утворюючи так званий сендвіч. Ця система може бути використана як чутливий елемент різного роду тонкоплівкових датчиків.

На рис. 3.2 представлені електронограми та відповідна мікроструктура від

зразка Ag(34)/Co(15)/П, відпаленого до температури 800 К, а в таблиці 3.2 представлені розшифровка відповідних електронограм при температурі термообробки. Як для двошаровій, так і в тришаровій системі в щойносконденсованому стані можна виділити на електронограмах окремі лінії ГЦК-Аg та ГЩП-Co та від дефектів пакування (ДП) (табл. 3.2). При цьому і в ГЦК-структурі утворюється ДП, що представляє собою область гексагонального пакування [134].



Рис. 3.2. Дифракційні картини та відповідна мікроструктура плівкової системи Ag(34 нм)/Co(15 нм)/П у невідпаленому стані (а) та після відпалювання до 800 К (б) (загальна концентрація – 32 ат. % Со)

На рис. 3.3 представлені електронограми та відповідні мікроструктури від зразків [Ag(32) + Co(8)]/П (а) та [Ag(12) + Co(29)]/П (б) у невідпаленому стані з ефективною концентрацією атомів Co 28 та 78 ат. % відповідно. Показано, що вже в процесі осадження утворюється т.р. з виділенням гранульованого стану Co (табл. 3.3). Недоліком методу одночасної конденсації є те, що отримані плівкові зразки є термічно нестабільні. При термовідпаленні до  $T_e = 700-900$  К відбувається ріст кристалітів т.р., що не спостерігається у випадку пошарової конденсації з наступною термообробкою після 800–900 К. Таким чином, плівкові зразки, отримані другим методом характеризуються лінійними залежностями ПО, ТКО та МО від температури.

Термообробка плівкових систем Ag/Co та Co/Ag/Co до температур 700 ÷ 900 К призводить до зміни електронограм від цих зразків. Так на рис. 3.4



Рис. 3.3. Дифракційні картини та відповідна мікроструктура плівкових систем [Ag(32) + Co(8)]/П (а) та [Ag(12) + Co(29)]/П (б) у невідпаленому стані (ефективна концентрація – 28 та 78 ат. % Со відповідно)

## Таблиця 3.2 Результати розшифрування електронограм від плівкової системи Аg(34)/Co(15)/П

		$T_{e}$	= 300	К		$T_s = 800 \text{ K}$						
№	I, в.о.	$d_{hkl}$ , нм	hkl	фаза	а, нм	I, в.о.	$d_{hkl},$ нм	hkl	фаза	а, нм		
1	cep	0,236	111	Ag	0,407	ДС	0,236	111	т.р(Ag, Со)	0,408		
2	ДС	0,205	200	Ag	0,407	cep	0,205	200	т.р(Ag, Co)	0,408		
3	cep	0,192	101	ГЩП- Со	Ι	cep	0,193	101	ГЩП-Со			
4	cep	0,145	220	Ag	0,407	cep	0,145	220	т.р(Ag, Со)	0,407		
5	сл	0,124	311	Ag	0,406	сл	0,123	311	т.р(Ag, Со)	0,408		
6	Дсл	0,108	201	ГЩП- Со	—	Дсл	0,108	201	ГЩП-Со	_		
$\overline{a}$ (Ag) = 0,407 ± 0,0003 нм, $a_0$ (Ag) = 0,406 нм [114]						$\overline{a}$ (T.p(Ag, Co)) = 0,408 ± 0,0003 H						

67

### Результати розшифрування електронограм від плівкових систем

	[Ag(32)	+Co(8)	]/∏	$T_{e}=300$	К	[Ag(	12)+Co(29)	)]/П	$T_{e}=300$	К
N⁰	<i>I</i> , в.о.	$d_{ m hkl},$ HM	hkl	фаза	а, нм	<i>I</i> , в.о.	$d_{ m hkl}$ , нм	hkl	фаза	а, нм
1	ДС	0,237	111	т.р. (Ag, Co)	0,408	ДC	0,236	111	т.р.(Ag, Co)	0,408
2	cep	0,205	200	т.р. (Ag, Co)	0,408	cep	0,204	200	т.р.(Ag, Co)	0,408
3	cep	0,182	101	ГЩП-Со	_	cep	0,192	101	ГЩП-Со	-
4	cep	0,145	220	т.р. (Ag, Co)	0,408	cep	0,144	220	т.р.(Ag, Co)	0,408
5	сл	0,124	311	т.р. (Ag, Co)	0,407	сл	0,123	311	т.р.(Ag, Co)	0,408
6	Дсл	0,109	201	ГЩП-Со	_	Дсл	0,118	201	ГЩП-Со	
$\overline{a}$ (т.р.(Ag, Co)) = 0,408 ± 0,0003 нм $a_0$ (Ag) = 0,408 нм [114]						$\overline{a}$ (T.p.(Ag, Co)) = 0,408 нм;				

## [Ад(32)+Со(8)]/П та [Ад(12)+Со(29)]/П

представлено електронограму від відпаленої до 700 К та охолодженої до 300 К плівки Co(10)/Ag(20)Co(10)/П. Ми можемо бачити (рис. 3.4 г та табл. 3.4), що лінії, місцеположення яких відповідає ГЦК-Ад стають чіткішими. На даній стадії термообробки в системах утворюється т.р.-(Ag, Co) та виділяються окремі гранули Со. Як показали дослідження утворення фази т.р. з елементами гранульованого стану в системі можливе лише при певній концентрації двох компонент. Мала концентрація атомів розчинника Ад (рис. 3.4 б) призводить до утворення т.р.-(Ag, Co) (це темні області на поверхні плівки Co) та виділення гранул Со. При відносно великому вмісті атомів Ад структура (рис. 3.4 в), навпаки, представляє собою однорідну крупнозернисту полікристалічну структуру, що відповідає шару Ад. При відпалюванні до 700 К у плівкових системах на основі Со і Ад з приблизно однаковим вмістом атомів обох сортів утворюються т.р. на основі ГЦК ґратки (рис.3.4 г), в об'ємі кристалів яких формуються наногранули Со, розмір яких має величину до 8÷12 нм. На рис. 3.4 приведені мікроструктура області т.р.-(Ад, Со) з гранулами Со.

Діаметри дифракційних кілець цієї ГЦК-структури дещо зменшилися. Таке зменшення призводить до збільшення середнього параметру ґратки до  $\bar{a} = 0,407$  нм, що дещо менше у порівнянні з параметром ґратки шару Ag ( $\bar{a}$  (Ag) = 0,408 нм) у невідпаленій плівці. Така зміна, за аналогією з системою на основі Cu i Co [136, 137], нами інтерпретується як утворення т.р.-(Ag, Co), хоча система Ag-Co у масивному стані характеризується майже повною незмішуваністю компонент. Таким чином, у результаті відпалювання дво- та багатошарових плівок на основі Ag i Co маємо змогу стабілізувати т.р.-(Ag, Co) з утворенням гранульованого стану із середнім розміром магнітних гранул 5-10 нм. У залежності від процентного вмісту атомів магнітної компоненти кристалічна структура термовідпалених плівкових зразків суттєво відрізняється.

Паралельно електронографічним дослідженням вказаних плівкових систем у даній роботі проводився їх ЕДС-аналіз. Використання даного методу досліджень дало змогу підтвердити концентраційний вміст компонент в системі,



Рис. 3.4. Дифракційні картини (а-г) та кристалічні структури (д, е) системи Co(10)/Ag(20)Co(10)/П після конденсації (а, д) та після відпалювання до  $T_{e} = 700$  (б), 800К (в), 900К (г, е).

70

## Фазовий склад плівкової системи Co(10)/Ag(20)Co(10)/П після конденсації та після термовідпалювання до

	Нерілп				$T_{e}, K$							
№			ПСЫД	11.		700			900		hkl	Фаза
	<i>I</i> , в.о.	$d_{ m hkl}$ , нм	hkl	фаза	а, нм	<i>I</i> , в.о.	$d_{ m hkl}$ , нм	а, нм	$d_{\rm hkl}$ , нм	а, нм		
1	ДС	0,236	111	ГЦК-Ад	0,408	ДС	0,235	0,408	0,236	0,408	111	т.р(Ад, Со)
2	cep	0,217	100	ГЩП-Со	0,250	cep	0,215	0,251	0,216	0,251	100	ГЩП-Со
3	cen	0.204	200		0.408	cep	0.203	0,406	0.203	0,406	200	т.р(Ад, Со)
5	cep	0,204	200	і цк-Аg	0,408		0,203	0,351	0,203	0,351	111	ГЦК-Со
4	cep	0,191	101	ГЩП-Со	-	cep	0,192	_	0,191	—	101	ГЩП-Со
5	сл	_	—	_	-	сл	0,176	0,352	0,176	0,352	200	ГЦК-Со
6	Дсл	0,144	220	ГЦК-Ад	0,407	Дсл	0,144	0,407	0,144	0,407	220	т.р(Ад, Со)
7	Дсл	0,124	110	ГЩП-Со	0,251	Дсл	0,123	0,356	0,123	0,356	110	ГЩП-Со
8	Дсл	0,123	311	ГЦК-Ад	0,408	Дсл	0,122	0,405	0,122	0,405	311	т.р(Ад, Со)
						$\bar{a}$ (T.p( Ag, Co)) =			$\bar{a}$ (T.p(Ag, Co)) =			
						$0,407 \pm 0,001$ нм;			$0,407 \pm 0,001$ нм;			
$\bar{a}$ (ГЦК-Ад) = 0,408 $\pm$ 0,0003 нм;						<i>ā</i> (ГЩП-Со) = 0,251 нм;			<i>ā</i> (ГЩП-Со) =			
$\bar{a}$ (ГЩП-Со) = 0,250 ± 0,0005 нм						<i>ā</i> (ГЦК-Со) =			0,251 нм			
						$0,353 \pm 0,002$ нм			<i>ā</i> (ГЦК-Со) =			
									$0,352 \pm 0,0$	002 нм		
a	<i>a</i> <sub>0</sub> (ГЦК-Аg) = 0,408 нм; <i>a</i> <sub>0</sub> (ГЩП-Со) = 0,250 нм; <i>a</i> <sub>0</sub> (ГЦК-Со) = 0,355 нм [114]											

## *T*<sub>в</sub> = 700 та 900 К

попередньо розрахованих за співвідношенням (2.3).Для цього використовувалися дві установки: РЕММА-102 та JEOL JSM-6610LV, які обладнані відповідними приставками. На спектрах (рис. 3.5) добре видно піки від Со та Ад. Але, оскільки, сам по собі метод EDX-аналізу є руйнівним методом, то ми можемо спостерігати і піки від матеріалу, з якого складається підкладка – в даному випадку це Са, Ті, Mg, Si та Al. На рис. 3.5 зображений спектр від зразка Ag(34)/Co(15)/П, який був відпалений до  $T_e = 800$  К. Як можна бачити з розшифровки даного спектру концентраційний вміст Со варіюється від 83,2 до 82,5 в залежності від місця сканування. Це дещо більше значення, ніж розраховане за співвідношенням (2.3) - 78 ат. % проти 82,92ат. % (середнє значення концентрацій). На спектрі від термовідпаленого до 800 К зразка Ад(34)/Со(15)/П спостерігаються і чужорідні піки від Са, Мд та Al, що належать матеріалу підкладки. Тому атомна концентрація Со розраховується від загального вмісту, що включає в себе і атоми матеріалу підкладки, що і призводить до невідповідності експериментальних і розрахункових даних.

#### 3.2.2. Багатошарова плівкова система на основі Со і Аи

На рис. 3.6 представлені мікроструктура та електронограми та від невідпалених та відпалених до температури 800 К плівок на основі Со і Аи. Згідно з діаграмою стану [14], система Аu-Co у масивних зразках характеризується майже повною незмішуваністю компонент, лише при температурах вище 700 К відбувається часткове перемішування, фіксуються окремо фази ГЦК-Au та ГЩП-Co + ДП (рис. 3.6 б). Параметр кристалічної гратки співпадає в межах похибки з табличними даними і становить  $a_{Au} = 0,408$  нм та  $a_{Co} = 0,250$  нм і  $c_{Co} = 0,406$  нм відповідно. На мікроструктурних знімках спостерігаються окремі кристали середнім розміром L = 20-30 нм, які характерні для плівки Au та набагато менші (L = 5-10 нм) кристали плівки Co. Термообробка на прикладі плівкового зразку Au(20)/Co(29)/П до температур



Рис. 3.5. Енергодисперсійний спектр від зразка Ag(34)/Co(15)/Π термовідпаленого до 800 К

Таблиця 3.5

## Розшифровка ЕДС спектру від плівкового зразка Ад(34)/Со(15)/П термообробленого до 800 К

Характеристики	Атомна концентрація	Атомна концентрація
спектру	<i>с</i> <sub>Со</sub> , ат. %	<i>с</i> <sub>Ag</sub> , ат. %
Середнє значення		
концентрації	82,9	17,1
Станд. відхилення	0,4	0,4
Максимальне		
значення с	83,2	17,5
Мінімальне значення с	82,5	16,8
700 ÷ 900 К свідчить про утворення т.р., оскільки на електронограмі, як показали дослідження, лише при певній концентрації ( $c_{Co} = 40-60$  ат.%) можливе утворення стабільного т.р. з елементами гранульованого стану на основі Со.

Особливістю електронографічних досліджень плівкових систем як на основі Au та Co, так само і на основі Ag та Co, є накладання самої інтенсивної лінії (111) Au або Ag з лінією (111) ГЩП-Co. Величина кристалічної гратки становить  $a_{\text{т.р.}} = 0,407$  нм та  $a_{Co} = 0,250$  нм, що корелює з експериментальними даними робіт. Розміри гранул Co становлять 5-10 нм.

На рис. 3.7 зображений спектр від зразка Au(20)/Co(29)/П, який був термовідпалений до  $T_6 = 800$  К. Як можна бачити з розшифровки даного спектру концентраційний вміст Со варіюється від 63,0 до 62,7 в залежності від місця сканування. Середнє значення концентрації, як показали експериментальні дослідження, становить 62,9 ат. %, що також дещо більше за розраховане значення за співвідношенням (2.3) – 65,4 проти 62,9 відповідно.

Проведені електронографічні та мікроскопічні дослідження не дають в повній мірі відповідь на питання в якій області в зразку утворюється фаза т.р.-(Au, Co). Виходячи з літературних даних [138], можна припустити, що утворення даної фази відбувається на межі поділу шарів. Оскільки, основним механізмом дифузії у полікристалічних зразках вважається дифузія по межам зерен [139], то утворення т.р. буде відбуватися в об'ємі окремих шарів біля меж зерен, де спостерігається скупчення дифундуючих атомів, що дозволяє досягти достатньої концентрації компонент. Таким чином, можна зробити наступний висновок: певна частина розчинених атомів залишається в решітці т.р., інша їх частина йде на утворення гранул ГЩП-Со, а надлишок атомів може знаходиться на межах зерен або локалізуватися у залишковому шарі Со. Термообробка зразків, отриманих пошаровою конденсацією компонент, дає змогу формувати стабільні т.р. з елементами гранульованого стану на основі Аи та Со. Термообробка плівкових систем на основі Аи та Со до температур



Рис. 3.6. Дифракційні картини та відповідна мікроструктура плівкової системи Au(20)/Co(29)/П у невідпаленому стані (а) та після відпалювання до  $T_{e} = 800$  К (б) (загальна концентрація – 68 ат. % Со)

Таблиця 3.6

Результати розшифрування електронограм в	від плі	івкової	системи
Au(20)/Co(29)/Π			

Мо	$T_{e} = 30$	00 K				$T_s = 800 \text{ K}$						
J1 <u>⊽</u>	<i>I</i> , в.о.	$d_{hkl}$ , нм	hkl	фаза	а, нм	<i>I</i> , в.о.	$d_{hkl}$ , нм	hkl	фаза	а, нм		
1	cep	0,235	111	ГЦК-Аи	0,407	Д.С.	0,232	111	т.р(Au, Co)	0,406		
2	Д.С.	0,204	200	ГЦК-Аи	0,408	cep	0,203	200	т.р(Au, Co)	0,406		
3	cep	0,202	101	ГЩП-Со	_	cep	0,147	101	ГЩП- Со	_		
4	cep	0,144	220	ГЦК-Аи	0,408	cep.	0,144	220	т.р(Au, Co)	0,407		
5	сл	0,123	311	ГЦК-Аи	0,408	сл	0,123	311	т.р(Au, Co)	0,408		
6	Д.сл.	0,108	222	ГЩП-Со	_	Д.сл.	0,108	201	ГЩП- Со	_		
$\overline{a}$ (	Au) = 0	$408 \pm 0,0$	0003	HM		$\overline{a}$ (T.p(Au, Co)) = 0,407 ± 0,0005 нм						



Рис. 3.7. Енерго-дисперсійний спектр від зразка Au(20)/Co(29)/П, термовідпаленого до 800 К

Таблиця 3.7

# Розшифровка ЕДС спектру від плівкового зразка Au(20)/Co(29)/П, термовідпаленого до 800 К

Характеристики	Атомна концентрація	Атомна концентрація
спектру	<i>с</i> <sub>Со</sub> , ат. %	<i>с</i> <sub>Au</sub> , ат. %
Середнє значення		
концентрації	62,9	37,1
Станд. відхилення	0,2	0,2
Максимальне		
значення с	63,0	37,4
Мінімальне значення с	62,7	37,0

700÷900 К до суттєвих змін у фазовому стані не призводить. Можливо частковий розпад т.р. (Au, Co) та збільшення розміру гранул відбувається при температурах більших, ніж 900 К.

## 3.3. Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем на основі Fe i Ag або Au [140]

Розглянемо більш детально фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем на основі Fe i Ag або Au на прикладі зразків Fe(10)/Ag(15)/Fe(10)/П (рис. 3.8) та Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П (рис. 3.9) після



конденсації та відпалювання до температур 700, 800 та 900 К.

Рис. 3.8. Дифракція від зразка Fe(10)/Ag(15)/Fe(10)/П після конденсації (а) та відпалювання до 800 К (б)

На електронограмах від невідпаленого зразка можна фіксувати дифракційні кільця, що належать Au і ОЦК-Fe. Зерна у плівці мають середній розмір *L* = 10 нм.

Термовідпалення до температури 700 К приводить до утворення в даній системі ГЦК т.р.-(Au, Fe). Через те, що в системі є надлишок атомів Fe, частина з них іде на утворення т.р. на основі матриці Au, а частина залишилася в залишковому шарі Fe. Параметр кристалічної гратки т.р. становить  $a_{m.p.} = 0,407$  нм і відповідає літературним даним [16, 17].

Подальша термообробка до температури 800 та 900 К призводить до утворення в системі оксиду заліза Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (на електронограмах фіксуються два кільця – (200) та (311) з  $d_{hkl} = 0,296$  нм і 0,252 нм відповідно) із параметром кристалічної гратки 0,838 нм. Лінія (200) з  $d_{hkl} = 0,204$  нм, що належить ГЦКфазі Au має більшу інтенсивність в порівнянні з (110) ОЦК-Fe i, таким чином, на електронограмі можна спостерігати подвійну лінію як одну.

Аналіз електронографічних і мікроскопічних даних для системи Fe(26)/Au(16)/Fe(25)/П показав, що у вихідному стані ця система має двофазний склад і представляє собою евтектику.

При відпалюванні до 700 К в системі Fe(5)/Au(15)/Fe(5)/П стабілізується обмежений т.р. (рис. 3.9 (в, г), табл. 3.8). При зміні товщини окремих шарів у свіжосконденсованих двошарових плівках Au/Fe фазовий склад ГЦК-Au+OЦК-Fe не змінюється і кристалічна структура залишається дрібнодисперсною з параметрами ґратки, які в цілому відповідають масивним зразкам.

Після термовідпалювання до  $T_e = 700$  К починається утворення т.р.-(Au, Fe) з параметром ґратки  $\bar{a}_{\text{т.р.}(Au, Fe)} = 0,406$  нм, при цьому на електронограмах також спостерігаються лінії від ОЦК-Fe із параметром ґратки  $\bar{a}_{\text{Fe}} = 0,287$  нм. При подальшому відпалюванні до 800 К суттєвих змін у фазовому складі не відбувається. Стосовно кристалічної структури, то в процесі термовідпалювання відбувається зростання середнього розміру зерна.

У плівкових зразках на основі Fe та Ag як і у випадку ОЦК-Fe і Au у невідпаленому стані спостерігається індивідуальність шарів з параметром кристалічної гратки  $\bar{a}_{Fe} = 0,287$  нм для ОЦК-Fe та  $\bar{a}_{Ag} = 0,407$  нм та ГЦК-Ag. На електронограмах від даних структур також не спостерігаються і оксидні кільця. Термовідпалювання до температури  $T_s = 700$  К приводить до утворення фази т.р. з параметром кристалічної гратки  $\bar{a} = 0,406$  нм із елементами гранульованого стану. У зразках типу Fe/Ag/Fe/П крім фази т.р. ще присутня фаза чистого ОЦК-Fe. Це пояснюється тим, що атоми верхнього шару ОЦК-Fe (d = 15-30 нм) не повністю провзаємодіяли з Ag, утворився надлишок атомів Fe, які і відповідають фазі ОЦК-Fe. В процесі термовідпалення спостерігається також ріст кристалів у структурі плівкового зразка.

3.4. Узагальнення та аналіз результатів вивчення фазоутворення у гранульованих плівкових сплавах на основі Со або Fe та Ag або Au [141-143]



Рис. 3.9. Дифракція (а-г) та мікроструктура (д, е) зразка Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П після конденсації (а, д) та відпалювання до 700 (б), 800 (в) та 900 К (г, е)





Рис. 3.10. Енергодисперсійний спектр від зразка Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П, термовідпаленого до 800 К

## Розшифровка електронограми від плівкової системи Fe(5) / Au(25) / Fe(5) / П після конденсації та

•		000	000 TZ
ΤΛΝΜΛΟΒΙΠΠΟΠΙΔΒΟΙΙΠΟ		XIII TO	
ісиминалинання л	AV /VV4	$\mathbf{O}\mathbf{U}\mathbf{U}$ I a	
		,	

Ma		$T_{e} = 3$	00 K			$T_{e} = 7$	700 K			$T_{\theta} = 8$	800 K		$T_{e} = 900 \text{ K}$				
JNō	<i>d</i> , нм	фаза	hkl	а, нм	<i>d</i> , нм	фаза	hkl	а, нм	<i>d</i> , нм	фаза	hkl	а, нм	<i>d</i> , нм	фаза	hkl	а, нм	
1	-	Ι	_	Ι	_	—	_	_	0,296	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	220	0,837	0,296	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	220	0,838	
2	-		_	-	_	—	_	—	0,252	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	311	0,837	0,253	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	311	0,837	
3	0,235	ГЦК- Аи	111	0,407	0,235	т.р(Au, Fe)	111	0,407	0,235	т.р(Au, Fe)	111	0,407	0,235	r.p(Au, Fe)	111	0,407	
4	0.204	ГЦК- Аи	200	0,408	0.204	т.р(Au, Fe)	200	0,408	0.204	т.р(Au, Fe)	200	0,408	0.204	т.р(Au, Fe)	200	0,408	
4	0,204	ОЦК -Fe	110	0,288	0,204	ОЦК- Fe	110	0,288	0,204	ОЦК- Fe	110	0,288	0,204	ОЦК- Fe	110	0,288	
ų	0 144	ГЦК- Аи	220	0,407	0 144	т.р(Au, Fe)	220	0,407	0 144	т.р(Au, Fe)	220	0,407	0 144	т.р(Au, Fe)	220	0,407	
5	0,144	ОЦК- Fe	200	0,288	0,144	ОЦК- Fe	200	0,288	0,144	ОЦК- Fe	200	0,288	0,144	ОЦК- Fe	200	0,288	
6	0,123	ГЦК- Аи	311	0,408	0,123	т.р(Au, Fe)	311	0,407	0,123	т.р(Au, Fe)	311	0,408	0,122	т.р(Au, Fe)	311	0,407	
7	0,117	ОЦК- Fe	211	0,287	0,117	ОЦК- Fe	211	0,287	0,118	ОЦК- Fe	211	0,288	0,118	ОЦК- Fe	211	0,288	
8	0,093	ГЦК- Аи	331	0,407	0,093	т.р(Au, Fe)	331	0,407	0,093	т.р(Au, Fe)	331	0,406	0,093	т.р(Au, Fe)	331	0,406	
	$ar{a}$ (Au) = 0,407 ± 0,0004 нм; $ar{a}$ (ОЦК-Fe) = 0,288 ± 0,0003 нм; $a_0$ (Au) = 0,408 нм; $a_0$ (ОЦК-Fe) = 0,287 нм		$ar{a}$ (т.р(Au, Fe)) = 0,407 ± 0,0002 нм; $ar{a}$ (ОЦК-Fe) = 0,288 ± 0,0003 нм;			$ar{a}$ (т.р(Au, Fe)) = 0,407 ± 0,0004 нм; $ar{a}$ (ОЦК-Fe) = 0,288 нм;				$ar{a}$ (т.р(Au, Fe)) = 0,407 ± 0,0002 нм; $ar{a}$ (ОЦК-Fe) = 0,288 нм;							

В даному розділі основна увага була приділена узагальненню результатів дослідження фазоутворення та кристалічної структури т.р. з елементами гранульованого стану на основі Со і Fe, та Ag i Au. Як показали дослідження, основним фактором, від якого залежить утворення в системі т.р. є концентрація магнітної компоненти. Були досліджені системи з середньою атомною концентрацією  $c_{Co} = 15 \div 90$  ат.% та  $c_{Fe} = 20 \div 80$  ат.%. Можна сказати, що в системах з концентрацією Со менше 40 ат. % майже не спостерігається утворення гранул цього металу, а весь він йде на утворення т.р. Концентрація на рівні 40-60 ат.% є оптимальною для утворення стабільного гранульованого плівкового сплаву. Так, на рис. 3.6 у термовідпалених зразках Au(20)/Co(29)/П до 700-900 К в структурі ми спостерігаємо гранули Со розміром 5 ÷ 10 нм.

Якщо ж говорити про фазоутворення, то у невідпалених дво- чи тришарових зразках, на відміну від отриманих одночасним напиленням, компоненти не перемішуються. На електронограмах спостерігаються лише лінії від ГЦК-Аи, ГЩП-Со та від ДП. Утворення твердого розчину відбувається лише при температурах відпалювання вище 700 К. Про це свідчить зменшення значення параметра кристалічної ґратки на електронограмах з  $a_{Au} = 0,408$  нм в невідпаленому зразку та  $a_{m.p.} = 0,406$  нм у термовідпаленому до 800 К.

В плівковій системі на основі ОЦК-Fe та Ag або Au спостерігається також утворення т.р. у відпалених зразках. В системі Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П при 300 К спостерігаються лише окремі кільця ГЦК-Au та ОЦК-Fe. При термообробці до температури 700 К утворюється т.р. на основі атомів Fe, а після 800 К в системі з'являється оксид Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.

Розраховані теоретично за співвідношенням (2.3) та отримані експериментально концентрації компонент в зразках в межах похибки відповідають один одному. Оскільки метод рентгено-спектрального аналізу є «руйнівним» методом дослідження, тому тонкоплівкові зразки сканувалися по усій товщині, і отримані результати дозволяють стверджувати, що при термообробці компоненти перемішуються та утворюється т.р. по всьому об'єму

зразка. Це важливий фактор, який потрібно враховувати при розробці різного роду сенсорів.

З рис. 3.11 видно, що експериментальні точки, які нанесені на графіки (як власні результати, так і взяті з робіт [144-147]) мають значне відхилення від правила Вегарда.

Узгодження наших результатів із даними робіт [146, 147] говорить про можливість формування обмежених т.р.-(Au, Co) і (Ag, Co) безпосередньо у процесі конденсації, хоча, у плівках на основі Ag і Co, отриманих одночасною конденсацією і термооброблених до 700 K, можна сформувати т.р. із параметром гратки, близьким до  $a_0(\Gamma \amalg K Co)$ . Очевидно, що в даному випадку мова іде про т.р.-(Co, Au) по аналогії з роботою [144], в якій спостерігалося утворення т.р.-(Co, Ag). Таким чином, т.р., що утворився в шаруватій структурі на основі Au і Co по значенню параметра гратки близький до т.р. у невідпаленому гранульованому сплаві.

Для більш достовірних результатів, які б не залежали від товщини плівки, для розрахунку параметру кристалічної гратки брали зразки із загальною товщиною d = 30.60 нм.

Термодинаміка утворення т.р.-(Au, Co) та т.р.-(Ag, Co) дещо складніша



Рис. 3.11. Залежність параметра гратки ГЦК т.р.-(Ag, Co) (a) та т.р.-(Au, Co) (б) від загальної концентрації атомів Co у плівковій системі. *a*<sub>0</sub> – параметр гратки масивних металів. Пунктирна лінія відповідає правилу Вегарда

[148]. Для атомів Ag і Au відношення ковалентних радіусів до радіусу атома Со однакові та складають 13 %, але електровід'ємності мають величину 1,93 і 2,54. У будь-якому випадку, можливості заміщень настільки багатоваріантні, що навіть атоми з різною валентністю можуть утворювати гетеровалентні т.р. У нашому випадку всі елементи мають подібні частково ковалентні типи зв'язків в гратці. Також відомо [148], що з підвищенням температури ліміт ізоморфності в системах зростає. З точки зору кристалохімічних законів це можна пояснити збільшенням іонних радіусів та зменшенням їх різниці. З точки зору термодинаміки це збільшення виникає за рахунок зростання конфігураційної ентропії. Діаграма стану системи Со-Аи має евтектичний характер, який сприяє утворенню т.р. та проміжних фаз. Компоненти в системі Со-Ад згідно діаграми стану взагалі не змішується, хоча розчинність атомів Со в Ад у рідкому стані має величину до 3,3 ат. %. Висновок про утворення т.р.-(Аu, Со) підтверджується результатами роботи [147], в якій проведені комплексні дослідження магнітоопору, елементного складу і плівкового мікроструктури сплаву Au-Co. отриманого методом магнетронного розпилення суміші порошків Au і Co. Методом мікроаналізу т.р.-(Аи, Со) перенасичений з максимальною автор встановив, ЩО концентрацією  $c_{Co} \cong 11$  ат.% і знаходиться в аморфному стані, а при відпалюванні він кристалізується (наприклад, плівковий сплав (Au – 23 ат.% Со) кристалізується при Т ≅520К). Електронно-мікроскопічні дослідження показали, що розмір гранул Со в матриці Аи складає 1,5-3 нм. Як видно за рис. 3.11 б, максимальне відхилення параметру від табличного значення ГЦК-Ад як в відпаленій, так і невідпаленій структурах має місце при  $c_{Co} \approx 50 \div 70$  %. Така тенденція відмічається і в т.р. гранульованих сплавів.

На рисунку 3.12 штрихова лінія відповідає правилу Вегарда. За параметр кристалічної гратки Fe була взята відповідна величина параметра гратки  $\gamma$ -Fe, що має, як і т.р.-(Au, Fe), кристалічну структуру ГЦК типу. В області вищих концентрацій значення близькі до т.р.-(Au, Fe). Виходячи з отриманих даних,



Рис. 3.12. Залежність параметра гратки *а* від загальної концентрації атомів Fe у плівковій системі Fe/Au/Fe/(П).  $\bullet$  – значення *а* для ГЦК-т.р. (Au, Fe),  $\bullet$  – значення  $a_{(111)}$ , розрахованого за  $d_{111}$ .  $a_0$  – параметр гратки масивних металів [114]. Пунктирна лінія відповідає правилу Вегарда

можна зробити висновок про те, що оптимальними значеннями для утворення т.р. з елементами гранульованого стану в системі Fe/Au/Fe є концентрація 40-60 ат. % магнітного матеріалу. Аналогічна тенденція прослідковується і в плівковій системі на основі Fe та Ag.

Узагальнюючи наведені результати можна сказати, що в системах на основі Ag і Co та Au і Co в діапазоні концентрацій магнітної компоненти 40-60 ат. % утворюється т.р. з елементами гранульованого стану Co. В системі ж на основі Fe i Au або Ag даний діапазон концентрацій є оптимальним для утворення т.р.-(Au, Fe) і т.р.-(Ag, Fe).

#### Висновки до розділу 3

1. У роботі здійснено удосконалення методики отримання т.р. та гранульованих плівкових сплавів, яка базується на пошаровій конденсації компонент з наступною термообробкою при температурі відпалювання  $T_{g} = 700 \div 900$  К.

2. Проведені дослідження фазоутворення в дво- та тришарових

плівкових системах на основі благородних і магнітних металів, в яких при термовідпалюванні утворюється т.р. з елементами гранульованого стану. В системі на основі Со та Ag або Au після термообробки утворюється т.р. атомів Co на основі ґратки Ag або Au та відбувається виділення по всьому об'єму зразка гранул ГЩП-Co, середній розмір яких становить 5–10 нм.

3. У системі на основі Fe та Ag або Au також спостерігається утворення т.р.-(Ag, Fe) або (Au, Fe) у зразках, відпалених вище температури  $T_e = 700$  K. На електронограмах зразків, які відпалювались до 800 K, фіксуються лінії від Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.

4. Для підтвердження концентраційного вмісту компонент в плівковому сплаві, що утворюється після термовідпалювання до  $T_e = 700-900$  К використовували енергодисперсійний аналіз; невідповідність ЕДС-аналізу теоретично розрахованими даним складає 12–15 %, що дає змогу говорити про задовільність експерименту.

5. Головним чином на утворення т.р. та гранульованого сплаву в вище зазначених плівкових системах впливає концентрація компонент в системі. Дослідження показали, що оптимальні значення  $c_{\text{Co}}$ , при яких утворються термічно стабільні т.р., є 40–60 ат. % магнітної компоненти.

6. Залежність параметра гратки від загальної концентрації атомів не узгоджується з правилом Вегарда як в системі на основі Со та Ag(Au), так і в системі на основі Fe та Ag(Au). У випадку Fe та Ag(Au), як видно із даної залежності оптимальним значенням концентрації  $c_{\text{Fe}} \in 20$ –45 ат. %.

#### РОЗДІЛ 4

## ЕЛЕКТРОФІЗИЧНІ ТА МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ СПЛАВІВ

Дослідження лише структурно-фазового складу не дадуть повної інформації про механізми утворення т.р. та його впливу на величину ТКО, КТ, МО та ГМО. Для цього важливо провести комплексні дослідження властивостей електрофізичних та магніторезистивних властивостей, результати яких представлені у даному розділі. Були досліджені термо-, тензо-, магніторезистивні та магнітооптичні властивості плівкових гранульованих сплавів та т.р. на основі Со або Fe та Ag або Au; проведений аналіз залежності фізичних властивостей від загальної концентрації магнітної компоненти в зразку.

### 4.1. Процеси електроперенесення в плівкових системах на основі Со або Fe та Ag або Au

#### 4.1.1. Термічний коефіцієнт опору

З літературних даних [108, 111] відомо, що значення ПО ( $\rho$ ), а отже, і ТКО (В) для плівкових та масивних зразків відрізняються на порядок. Нашою було встановлення залежності  $\rho(T)$  для систем, в яких при задачею термовідпаленні утворюється т.р. або гранульований плівковий сплав. Для цього були вивчені два типи плівкових систем: а) двошарові та тришарові зразки на основі Со і Ag, в яких при термообробці утворюються т.р.-(Ag, Co) та виділяються гранули Со; б) тришарові системи типу Fe/Au/Fe, в яких також при вище 700 К утворюються т.р.-(Au, Fe) та при температурах певних концентраціях виділяються гранули Fe. Для дослідження ТКО використовувалася установка, описана в пункті 2.3.1, а самі зразки мали

наступні геометричні розміри —  $10 \text{ мм} \times 1 \text{ мм} \times x \text{ нм}$ , де x — товщина, і  $x = 15 \div 60 \text{ нм}$ . Розрахунок  $\rho$  проводився за формулою:

$$\rho = \frac{R \cdot a \cdot d}{l},$$

де *R* – електричний опір зразка;

*l*, *a*, *d* – довжина, ширина та товщина відповідно.

Експериментальні значення ТКО, отримані для плівкових зразків після їх охолодження до 300 К також порівнювалися із розрахованими за співвідношеннями для двох моделей – для біпластини та плівкового сплаву. Співвідношення (1.1) для  $\beta$  двошарової плівки, в якій зберігається індивідуальність окремих шарів («біпластина») розглядається в підрозділі 1.2, а для  $\beta$  плівкового сплаву співвідношення записується так:

$$\beta \cong \frac{\beta_1}{1 + \frac{c_2 \rho_2}{c_1 \rho_1}} + \frac{\beta_2}{1 + \frac{c_1 \rho_1}{c_2 \rho_2}},$$
(4.1)

де  $d_1$  і  $d_2$  – товщина 1-го і 2-го шару;

*c*<sub>1</sub> і *c*<sub>2</sub> – концентрація атомів, яка розраховується за співвідношенням (2.3) або визначається експериментально;

 $\beta_1$  і  $\beta_2$  та  $\rho_1$  і  $\rho_2$  – ТКО та питомий опір відповідних одношарових зразків товщиною  $d_1$  і  $d_2$ .

Лінійний характер β в принципі закладений у співвідношенні (4.1), яке можна перетворити до вигляду:

$$\beta \cong \frac{c_1 \rho_1 \beta_1 + c_2 \rho_2 \beta_2}{\rho}$$

Звідси видно, що для випадку  $c_1 >> c_2$  (перенасичений сплав) β прямо пропорційний концентрації  $c_1$ . Також відмітимо, що ТКО обернено

пропорційний температурі, якісно ця залежність має місце, якщо зафіксувати концентрацію.

На рис. 4.1 представлені температурні залежності питомого опору та ТКО (на вставках) для двошарових систем на основі Со і Ад. Відмітимо деякі особливості отриманих залежностей. Для даних систем, як і для всіх металів, характерне зменшення опору з ростом температури під час нагрівання при першому циклі. Це можна пояснити заліковуванням дефектів типу «вакансіядомішковий атом» кристалічної будови у свіжосконденсованих зразках.  $Ag(7)/Co(15)/\Pi$ , Приведені залежності систем Ag(23)/Co(19)/Π, для  $Ag(43)/Co(15)/\Pi$  (рис. 4.1в, д,  $\epsilon$ ) дають можливість вивчити зміну питомого опору та ТКО при збільшенні загальної товщини досліджуваної системи. Спостерігається також зміна форми кривих – від стрімкого зменшення питомого опору в системі з найменшою товщиною до більш пологого, і яке відбувається при дещо вищих температурах, в системі із загальною товщиною d = 68 нм. Це можна пояснити тим, що процес заліковування дефектів проходить при нижчих температурах (450–550 К) проти 500–650 К у більш тонших зразках. Залежності мають «вендівський» характер і можуть в тій чи іншій мірі залежати від температури Дебая масивного чи плівкового матеріалу, оскільки енергія активації заліковування дефектів безпосередньо залежить від цієї температури. Так, як показали дослідження, поблизу цих температур змінюється кутовий коефіцієнт залежності  $\rho(T)$  і відповідно  $\beta(T)$ . Тому при термовідпалюванні потрібно враховувати дані фактори та проводити термообробку до вищих  $\Theta_D$  ( $\Theta_{DAg} = 225$  K,  $\Theta_{DAu} = 165$  K, температур,  $\Theta_{DCo} = 385 \text{ K}, \ \Theta_{DFe} = 464 \text{ K}).$ 

Також на рис. 4.1 представлені залежності  $\beta(T)$  систем з різною концентрацією та товщиною. Аналізуючи отримані дані, можна зробити висновок, що величина  $\beta$  залежить як від товщини, так і від концентрації. Залежності для системи з більшою концентрацією Со, знаходяться вище над кривими з меншою концентрацією. Температурна залежність  $\beta(T)$  пропорційна



Рис. 4.1. Температурні залежності  $\rho$  (а – в, д, є) і  $\beta$  (а – ж) для плівок Ag(40)/П (а), Co(40)/П (б) та двокомпонентних плівкових систем Ag/Co/П (в – ж) з різною концентрацією атомів Co та загальною товщиною d = 20 (г), 40 (е) і 60 нм (ж); Ag(7)/Co(15)/П (в), Ag(23)/Co(19)/П (д), Ag(43)/Co(15)/П (є)

1 / *T* і при температурах 350-750 К спостерігається різке зменшення значення ТКО (майже в 2 рази), а в області високих температур (600–750 К) криві виходять на насичення.

Підтвердженням того, що у плівкових системах утворюються т.р., можуть бути не тільки наші електрографічні дослідження залежності параметра ГЦК решітки т.р. (Au(Ag), Co) від концентрації атомів Co, а й залежність електрофізичних властивостей від концентрації компонент у плівковій системі. Відмічаємо, що значення ТКО та  $\rho$  задовільно корелюють із загальною концентрацією атомів Co.

Так, на рис. 4.2 представлена залежність  $\beta$  від загальної концентрації атомів Со в термостабілізованій системі Ag/Co/П. При концентраціях 60-80 ат. % відбувається різке збільшення значення  $\beta$ . Зменшення  $\beta$  від 1,5 × 10<sup>-3</sup> K<sup>-1</sup> до 0,8 × 10<sup>-3</sup> K<sup>-1</sup> при термообробці від 300 до 700 K і збільшенні концентрації від 20 до 82 ат. % Со можна пояснити поступовим розмиттям інтерфейсу і переходом до гранульованого стану, в якому ефект розсіювання електронів на гранулах менший, ніж на інтерфейсі внаслідок появи надлишкових атомів Co.

У загальному випадку для досліджуваних систем можна відмітити такі схожі особливості температурних залежностей ρ i β. Близькість електрофізичних властивостей складових не дозволить чітко простежити перехід від шаруватої структури до утворення т.р. та гранульованого стану. Але, наприклад, про інтенсивні зміни у фазовому стані в плівкових системах Au/Co та Ag/Co та стабілізацію т.р.-(Au(Ag), Co) (виходячи з висновків розділу 3) при досягненні температури 700 К говорить кардинальна зміна кута нахилу  $\beta(T)$ . Очевидно, що утворення проміжного шару т.р. в результаті термодифузії призводить до зміни електрофізичних властивостей системи вцілому.

На рис.4.3 представлені температурні залежності питомого опору та ТКО плівкових систем Fe(6)/Au(15)/Fe(5)/П та Fe(5)/Au(4)/Fe(5)/П. Загальновідомий факт зменшення опору з ростом температури під час нагрівання при першому





Рис. 4.2. Концентраційні залежності ТКО для двокомпонентних плівкових систем Ag/Co/П із загальною товщиною d = 20 (а), 40 (б), 60 нм (в) при різних температурах



Рис. 4.3. Температурні залежності  $\rho$  та  $\beta$  (на вставках) для плівкової системи Fe(5 )/Au(4 )/Fe(5 )/П (а) та Fe(6 )/Au(15 )/Fe(5 )/П (б)

циклі, що пояснюється заліковуванням дефектів кристалічної будови у свіжосконденсованих зразках, має місце на всіх залежностях і починається при  $T_s \approx 500$  К. При температурах 650–700 К закінчується даний процес, що характеризується поступовим ростом  $\rho$ . Другий цикл нагрівання / охолодження має лінійний характер. Залежність від товщини плівок не тільки величини питомого опору та ТКО, а і форми кривої можна простежити на представлених графіках для плівок Fe(6)/Au(15)/Fe(5)/П та Fe(5)/Au(4)/Fe(5)/П (рис. 4.3).

На рис. 4.4 представлені концентраційні залежності  $\beta$  для тришарових плівкових систем Fe/Au/Fe/П при температурі 300 К. При збільшенні загальної товщини плівкового зразка спостерігається незначний ріст  $\beta$  на (0,1–0,25)·10<sup>-3</sup> К. Значний ріст  $\beta$  (від (1,15–1,25)·10<sup>-3</sup> до (1,28–1,45)·10<sup>-3</sup> К) спостерігається при збільшенні концентраційного вмісту магнітної компоненти  $c_{\text{Fe}}$ , що можна пояснити розмиттям інтерфейсу і утворенням т.р. з елементами гранульованого стану.



В усіх випадках величина ТКО монотонно збільшується з ростом товщини, виходячи поступово на насичення і сягає асимптотики  $\beta_{\infty}(Au) = 1,45 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  і  $\beta_{\infty}(Fe) = 1,5 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ . На відміну від ТКО, значення питомого опору плівок падає з ростом товщини також виходячи на насичення:  $\rho_{\infty}(Au) = 8 \cdot 10^{-7} \text{ Om} \cdot \text{m}$ ,  $\rho_{\infty}(Fe) = 9 \cdot 10^{-7} \text{ Om} \cdot \text{m}$ .

При переході до двошарових плівок характерна особливість цих

залежностей, їх вендівський характер, коли на першому термостабілізаційному циклі опір різко зменшується в результаті заліковування термоактивованих дефектів кристалічної будови типу вакансія-міжвузловий атом, зберігається.

### 4.1.2. Коефіцієнт тензочутливості [152, 153]

Типові деформаційні залежності *R* і  $\Delta R/R$  від  $\varepsilon_l$  для одношарових Ag, Co та двошарових плівок Ag/Co, на основі яких проводився розрахунок величин  $\gamma_{l,u}$  від  $\varepsilon_l$  в інтервалі деформації  $\Delta \varepsilon_l = 0-1$  %, представлені на рис. 4.5 і 4.6 відповідно. Вкажемо характерні особливості деформаційних залежностей для одношарових зразків. По-перше, І-й деформаційний цикл «навантаження— зняття навантаження» відрізняється від подальших внаслідок протікання різних релаксаційних процесів (частковий поворот зерен, перерозподіл дефектів кристалічної будови, мікропластична деформація). При подальших циклах спостерігається певна стабілізація тензорезистивних властивостей. По-друге, зміна характеру залежностей  $R(\varepsilon_l)$  і  $\Delta R/R(\varepsilon_l)$  при  $\varepsilon_l = 0,3$  % для плівки Co(70)/П (рис. 4.5 а) свідчить про перехід від пружної (квазіпружної) до пластичної деформації. Зазначимо, що для плівок Ag пружна і квазіупружна деформація має місце до величини  $\varepsilon_l \cong 1\%$  (рис. 4.5 г).

Були проведені дослідження тензорезистивних властивостей плівок Ag різної товщини в діапазоні деформації  $\Delta \varepsilon_{l1} = (0-1)$ % та  $\Delta \varepsilon_{l2} = (0-2)$ %, розраховані середні значення КТ (рис. 4.6, 4.7) та побудовані розмірні залежності КТ від товщини *d* плівок Ag (рис. 4.8) для різних циклів деформації в діапазоні  $\Delta \varepsilon_{l1} = (0-1)$ % (а) і  $\Delta \varepsilon_{l2} = (0-2)$ %.

Отримана залежність (рис. 4.7) не типова, вона не узгоджується з подібними для різних циклів деформації в діапазоні  $\Delta \varepsilon_{l1} = (0-1)$ % (а) та  $\Delta \varepsilon_{l2} = (0-2)$ % (б) дослідженнями розмірного ефекту [105]. На величину КТ впливають різні механізми розсіювання електронів: на межах зерен, фононах і поверхні плівки. Відомо, що зі збільшенням товщини внесок розсіювання на поверхні зразка в



Рис. 4.5. Залежність  $\Delta R / R$ ,  $\gamma_{lm}$  і R від  $\varepsilon_l$  (а, в) та залежність  $\gamma_{lm}$  від  $\varepsilon_l$  для І деформаційного циклу (б, г) для плівки Co(70) (а, б) та Ag(38) (в, г). Римськими цифрами позначені номера деформаційних циклів



Рис. 4.6. Деформаційні залежності зміни відносного опору  $\Delta R/R_{\Pi}$ , КТ  $\gamma_{lm}$  та опору *R* для плівки Ag(35) при деформації  $\Delta \varepsilon_l = 1\%$  (a) і  $\Delta \varepsilon_l = 2\%$  (б).



Рис. 4.7. Деформаційні залежності  $\Delta R/R_{\Pi}$ ,  $\gamma_{lM}$  та R для плівки Ag(63) при деформації  $\Delta \varepsilon_l = 1$  % (а) і  $\Delta \varepsilon_l = 2$  % (б)



Рис. 4.8. Залежність коефіцієнта тензочутливості  $\gamma_l$  від товщини плівки Ag в інтервалі деформацій  $\Delta \varepsilon_{ll} = (0-1) \%$  (а) і  $\Delta \varepsilon_{l2} = (0-2) \%$  (б)

загальну величину КТ зменшується, а внесок в розсіювання на межах зерен і фононах, навпаки, збільшується [149]. На графіку  $\overline{\gamma}_{lm}(d)$  (рис. 4.8 а) спостерігається мінімальне значення КТ при d = 50 нм, що свідчить про перевагу внеску зерномежового розсіювання у величину КТ, і, як наслідок, про перехід від пружної до квазіпружної та пластичної деформації. Розмірна залежність при товщині до 50 нм типова і її можна описати в рамках теоретичної моделі Фукса-Зондгеймера. При товщині більше 50 нм, спостерігається пластична деформація з процесами локалізації дефектів на межах зерен.

Для двошарових систем Ag/Co характерна відмінність І-го деформаційного циклу від наступних, а пружна деформація спостерігається лише до  $\Delta \varepsilon_l = 0,3-0,4$  %. Починаючи з другого деформаційного циклу спостерігається тенденція до стабілізації тензорезистивних властивостей. Крім того, виходячи з типових залежностей для одно- та двошарових зразків, можна зробити висновок, що діапазон пружної деформації для систем Ag/Co залежить від концентрації атомів Co, плівка якого має меншу межу пружності у порівнянні із плівками Ag.

На рис. 4.9 приведені приклади деформаційних залежностей зміни відносного опору  $\Delta R/R_{\Pi}$ ,  $\gamma_{lm}$  та опору *R* для двокомпонентних плівкових систем Ag/Co/П з різною концентрацією компонент.

На залежностях  $\gamma_{lm}$  від  $\varepsilon_l$  для плівкової системи Ag(45)/Co(36)/П спостерігається ефект аномального збільшення коефіцієнта тензочутливості від деформації (вставка на рис. 4.10 в). Максимум на залежності миттєвого КТ відповідає межі переходу пружна / пластична деформація. Аналогічна нелінійність на залежностях  $\gamma_{lm}$  від  $\varepsilon_l$  спостерігалася у попередніх дослідженнях (наприклад, [154]).

Пояснити фізичну природу максимуму на залежності миттєвого коефіцієнта повздовжньої тензочутливості  $\gamma_{lm}$  від деформації  $\varepsilon_l$  для двошарових плівкових систем можна проаналізувавши умову екстремуму (максимуму), яка отримується



Рис. 4.9. Деформаційні залежності Δ*R*/*R*<sub>п</sub>, *γ*<sub>*l*<sup>M</sup></sub> та *R* для плівок Ag(38)/Co(7)/П (а) і Ag(38)/Co(15)/П (б)

шляхом спрощення рівняння  $\frac{\partial \gamma_{l,m}}{\partial \varepsilon_l} = 0$  [154]. Для зручності математичних перетворень  $\gamma_l$  замінюють через  $\gamma_l^{\rho}$  (індекс " $\rho$ " означає, що коефіцієнт деформації виражається через питомий опір), які пов'язані між собою наступним співвідношенням:

$$\gamma_l^{\rho} \equiv \frac{d\ln\rho}{d\varepsilon_l} = \gamma_l - 1 - 2\mu.$$
(4.2)

Враховуючи вираз для  $\rho$  у випадку паралельного з'єднання подвійних шарів, співвідношення (4.2) можна записати так:

$$\gamma_{l}^{\rho} = \frac{d\ln\rho}{d\varepsilon_{l}} = \gamma_{l1}^{\rho} + \gamma_{l2}^{\rho} - \frac{d_{1}\mu_{1} + d_{2}\mu_{2}}{d_{1} + d_{2}} - \frac{\gamma_{l1}^{\rho}\rho_{1}d_{2} - \rho_{1}d_{2}\mu_{2} + \gamma_{l2}^{\rho}\rho_{2}d_{1} - \rho_{2}d_{1}\mu_{1}}{\rho_{1}d_{2} + \rho_{2}d_{1}}.$$
 (4.3)

Для плівкової системи, в якій утворюється т.р., співвідношення для  $\rho$  можна записати так:

$$\rho = \rho_{3a\pi} + c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2, \tag{4.4}$$

де *ρ*<sub>зал</sub> – залишковий питомий опір. З урахуванням співвідношення (4.4) *γ*<sup>ρ</sup><sub>l</sub> можна записати у вигляді:

$$\gamma_l^{\rho} = \frac{\gamma_{l1}^{\rho}}{1 + c_2 \rho_2 / c_1 \rho_1} + \frac{\gamma_{l2}^{\rho}}{1 + c_1 \rho_1 / c_2 \rho_2}.$$
(4.5)

Виходячи із умови екстремуму для співвідношень (4.3) і (4.5), автори [154] прийшли до висновку, що поява максимуму на залежності  $\gamma_{lm}$  від  $\varepsilon_l$  обумовлена нелінійною за деформацією зміною питомого опору, яка відбувається при використанні застосованого у даній роботі динамічного режиму розтягування зразка, та структурними процесами, що протікають у плівкових системах при переході від пружної до пластичної деформації.

Порівняння середньої величини  $\overline{\gamma}_{lm}$  для одношарових плівок Ag і Co із відповідною величиною для двошарових систем Ag/Co однакової загальної товщини всієї системи представлено у таблиці 4.1. Аналіз даних вказує на те, що значення  $\overline{\gamma}_{lm}$  двошарових зразків більше, ніж в одношарових. Оскільки в системі зберігається індивідуальність окремих шарів, то свій внесок у загальну величину коефіцієнта тензочутливості дають процеси розсіювання на межі поділу шарів, тобто наявність інтерфейсного розсіювання призводить до збільшення величини  $\overline{\gamma}_{lm}$ . Це відкриває можливість створення чутливого елементу тензодатчика на основі багатошарової плівкової системи, компонентами якої виступають плівки Ag і Co.

Як показали експериментальні дослідження, середнє значення  $\gamma_l$  для двошарових плівок Ag/Co більше, ніж КТ для одношарових плівок Ag та Co у випадку однакової загальної товщини. Так, наприклад, у випадку системи Ag(38)/Co(15)/П –  $\gamma_l = 1,74$ , а в плівці Ag(53)/П –  $\gamma_l = 1,45$ . Цей факт можна пояснити додатковими процесами розсіювання електронів провідності на межі поділу шарів. Таким чином, інтерфейсне розсіювання сприяє збільшенню величини КТ, що в подальшому може бути використане при побудові



Рис. 4.10. Залежність  $\Delta R / R$ ,  $\gamma_{lm}$  і R від  $\varepsilon_l$  (а, в) та залежність  $\gamma_{lm}$  від  $\varepsilon_l$  для І деформаційного циклу (б, г) для плівкових систем Ag(15)/Co(45)/П (а, б) та Ag(45)/Co(36)/П (в, г)

Таблиця 4.1

Зразок Загальна Середні значення $\gamma_{lm}$ для різних деформаційних циклів										$\frac{\gamma_l(\mathrm{Ag})}{\gamma_l}$
	НМ	Ι	II	III	IV	V	VI	VII		
Аg(18)/Со(17)/П	35	0,77	1,63	1,79	1,80	2,27	3,19	4,25	0,55	0,41
Аg(22)/Со(22)/П	44	3,99	3,72	3,64	3,61	3,60	3,58	3,55	0,50	0,47
Аg(40)/Со(20)/П	60	2,38	2,39	2,43	2,44	2,40	2,34	2,37	0,61	0,66
Аg(15)/Co(45)/П	60	4,78	4,47	4,22	4,15	4,04	3,91	3,85	0,38	0,41
Аg(35)/Со(40)/П	75	2,54	2,53	2,51	2,49	2,50	2,51	2,50	0,45	0,43
Аg(45)/Co(36)/П	81	4,37	3,26	3,03	2,89	2,79	2,74	2,70	0,42	0,40

Тензочутливість плівок на основі Ад і Со

чутливого елемента тензодатчика на основі багатошарової плівкової системи, компонентами якої виступають плівки Ag та Co.

В процесі дослідження тензорезистивних властивостей плівок Ag було встановлено, що середнє значення  $\overline{\gamma}_{l,m}$  змінюється в проміжку від 1,40 до 3,67 од. в інтервалі деформацій  $\Delta \varepsilon_l = (0 \div 1)\%$ , і від 1,49 до 4,92 при  $\Delta \varepsilon_l = (0 \div 2)$  % в залежності від концентрації магнітної компоненти. Також при товщині більше 50 нм спостерігається перехід при  $\varepsilon_l = 0,4$  % від пружної до пластичної деформації для плівок Ag, про що свідчить мінімум КT на розмірній залежності  $\overline{\gamma}_{l,m}(d)$ .

У роботі, використовуючи методику описану в пункті 2.1.2, були також досліджені тензорезистивні властивості відпалених зразків на основі Со або Fe та Ag або Au. Залежності КТ від деформації представлені на рис. 4.11. Були досліджені зразки з концентраційним вмістом магнітної компоненти на рівні 48-60 ат. % і товщиною від 10 до 30 нм. Максимальне значення у для 5го деформаційного циклу при деформації до 0,8 % становить 3,96 одиниці для невідпаленого плівкового зразка Au(25)/Co(15)/П (для відпаленого зразка ло 800 К – 3,52 од.). Мінімальні значення спостерігаються в системі Au(25)/Fe(20)/П – 2,05 та 1,97 відповідно для невідпаленого та відпаленого зразків. Більші значення КΤ V невідпалених зразках відносно термовідпалених можна пояснити у перших наявністю інтерфейсу на межі поділу шарів. В таблиці 4.2 представлені узагальнені дані КТ для плівкових систем на основі Со або Fe та Ag або Au. По відношенню до величини КТ в одношарових плівках Co, Ag та Au  $\gamma_l$  таких плівкових систем також спостерыгається збільшене у 1,5-2 рази значення. Даний факт також може свідчити про утворення т.р. з елементами гранульованого стану.

#### 4.2. Магніторезистивні і магнітооптичні властивості [155-159, 161]

4.2.1. Особливості структурно-фазового стану плівкових матеріалів із можливим СЗРЕ



Рис.4.11. Деформаційні залежності  $\Delta R/R_{\Pi}$ , для плівок Ag(18)/Co(15)/МП (а, б) і Ag(10)/Fe(10)/МП (в, г) до термовідпалення (а, в) та після термообробки до температури  $T_{g} = 800$  К. МП – металева підкладка

Таблиця 4.2

# Значення $\gamma_l$ для різних деформаційних циклів для двошарових систем Ag/Co при $\Delta \varepsilon_l = 0 - 0.8\%$

$\Delta \varepsilon_l$ ,	2manare		$c_{\rm Co},$			γι		
%	эразок	<i>I</i> <sub>6</sub> , Κ	ат. %	Ι	II	III	IV	V
	Ag(10)/Fe(10)/Π	300	60	2,8	2,7	2,6	2,5	7,5
	Ag(10)/Fe(10)/Π	800	60	2,1	1,9	1,9	1,8	1,7
	Ag(18)/Co(15)/Π	300	56	4,5	4,3	3,9	3,8	3,5
	Ag(18)/Co(15)/Π	800	56	3,5	3,4	3,3	3,1	3,0
0.804	Au(35)/Fe(30)/П	300	55	2,7	2,5	2,4	2,4	2,3
0,8%	Au(35)/Fe(30)/П	800	55	2,6	2,6	2,4	2,3	2,2
	Au(25)/Fe(20)/П	300	53	2,7	2,4	2,3	2,2	2,1
	Au(25)/Fe(20)/П	800	53	2,5	2,4	2,3	2,2	2,0
	Au(25)/Co(15)/П	300	48	4,5	4,4	4,2	4,1	4,0
	Au(25)/Co(15)/П	800	48	3,8	3,7	3,6	3,6	3,6

Як показують дослідження кристалічної структури у плівкових системах на основі Со і Fe та Cu, Au, Pt, Ag або Ge реалізується декілька можливих структурно-фазових станів у залежності від ступеня розчинності компонент. У роботах [136, 137] показана можливість утворення метастабільних т.р. майже у всіх випадках вказаних поєднань магнітний-немагнітний метал. Формування метастабільного т.р.-(Си, Со) відбувається в системі Со/Си вже в процесі конденсації. У системі Fe/Cr на стадії конденсації теж відбувається утворення т.р.-(α-Fe, Cr), який, на відміну від т.р.-(Cu, Co) [116] термічно стабільний. У плівкових системах з обмеженою розчинністю, таких як Au/Co, Co/Ag, Fe/Cu, також можна спостерігати т.р. із обмеженою розчинністю. У роботі [116] повідомляється про можливість утворення т.р. в мультишарових плівкових системах на основі фрагментів Fe/Cu т.p.-(Cu, Fe) на основі ГЦК гратки Cu (при товщинах шарів  $d_{\rm Fe} \le 1,5$  HM) або ОЦК ґратки Fe **(B** інтервалі товщин 1,5 <  $d_{\rm Fe} \le 2$  нм). У циклі робіт [70-77, 149] встановлені умови аналогічного утворення т.р. в системах на основі Au i Co та Ag i Co, що починається при T<sub>e</sub> = 700 К, причому поряд з утворенням т.р. спостерігається виділення наногранул Со (рис. 4.12).

Згідно діаграми стану Ag-Fe для масивних зразків [14] взаємна розчинність компонент обмежена у відповідності із правилом Юм-Розері. У системах на основі Co i Au, Ag чи Cu немагнітна компонента має ГЦК тип решітки, i, хоча Co має дві модифікації – низькотемпературну ГЩП та ГЦК, це не впливає на стабілізацію т.р. на основі Au чи Ag.

Згідно [160] мікромагнетизм це сукупність магнітних властивостей неупорядкованих т.р., що обумовлені присутністю випадкових конкуруючих обмінних взаємодій між локальними магнітними моментами і неоднорідностями розподілу компонентів розчину, тобто різницею у ближньому порядку атомів усієї ґратки. Прикладом такого мікромагнетизму можуть бути т.р. 3*d*-металів у матрицях Cu, Au або Ag. За результатами досліджень дифузійних процесів у системах на основі плівок Co та Cu, Au i Ag конденсаційно-стимульована та

термодифузія відбувається за рахунок дифузії по межах зерен. Причому коефіцієнти дифузії у таких системах у напрямі Co $\rightarrow$ Au, Co $\rightarrow$ Ag та Co $\rightarrow$ Cu значно більші, ніж у зворотньому. Це призводить до утворення т.р. на основі матриці вказаних немагнітних шарів. Такі т.р. можуть бути з необмеженою розчинністю, як наприклад, система Co/Cu (див., наприклад, [136, 137]), так і з обмеженою – системи Co/Au та Co/Ag. Обмеження розчинності призводить до локалізації атомів Co по межах зерен у вигляді окремих атомів та кластерів. Саме такі неупорядковані магнітні новоутворення призводять до появи мікромагнетизму.

Стадію утворення гранульованого стану можна також відстежити за зміною форм петель гістерезису МОКЕ та магнітоопору, що проілюстровано на рис. 4.13. Гранульовані сплави, на відміну від інших структур, не мають у своєму складі структурносуцільних шаруватих утворень магнітної компоненти з доменною структурою. Магнітні гранули у цих сплавах, особливо при великій різниці у розмірі, мають широкий діапазон магнітного поля перемагнічування. Тому, площа під кривою МО набагато більша, ніж в інших випадках, а для МОКЕ характерні великі значення коерцитивності.

## 4.2.2. Магніторезистивні і магнітооптичні властивості сплавів на основі Со або Fe та Au або Ag

У розділі наведені результати експериментального дослідження магніторезистивних та магнітооптичних властивостей у плівкових структурах на основі магнітних і благородних металів на стадії збереження індивідуальності окремих шарів, на всіх етапах формування т.р., після процесу їх часткового розпаду та стабілізації гранульованого стану магнітної компоненти. Такі системні дослідження магнітних властивостей плівкових систем із можливим СЗРЕ дозволять внести ясність у розуміння проблеми формування плівкових багатошарових структур із наперед заданими властивостями.



Рис. 4.12. Мікроструктура та відповідна їй електронограма гранульованого стану т.р.-(Со, Ag) (а), сформованого на основі двошарової плівкової системи Ag(40)/Co(30)/П, та т.р.-(Au, Co). Із роботи [166]



Рис. 4.13. Схематичне представлення багатошарової плівкової системи у вигляді мультишарів (а) або гранульованих т.р. (б) та відповідні їм типові залежності МО (в, г) і МОКЕ (д, е) від індукції магнітного поля. НМ, М – немагнітний та магнітний шари, стрілками вказані напрямки векторів намагніченості. Із роботи [166]

Експериментальні дані МОКЕ, МО свідчать про анізотропію магнітних властивостей в полікристалічних феромагнітних плівках Co. Детальні дослідження МОКЕ в зразках Со одношарових плівок із зміною кута повороту зразка в площині плівки показують залежність структури і товщини зразка від Максимальна анізотропія спостерігається температури відпалення. при  $T_{e} = 400 \div 600$  К. Це можна пояснити змінами кристалічної структури плівок Со. Процес заліковування дефектів у плівках Со починається при відносно низьких температурах. Це призводить до поліпшення доменної структури плівки і відображається у збільшенні анізотропного магнітоопору (АМО) зразка. Істотні зміни в структурі можуть спостерігатися при температурах 600-700 К, при яких відбувається процес поліморфного переходу ГЩП Со → ГЦК Со. При цьому у мікроструктурі плівки відбуваються зміни: збільшується середній розмір зерен та коерцитивної сили і відповідно зменшується значення АМО.

У багатошарових плівкових систем на основі Со, вивчених нами, значення МОКЕ залежить від анізотропії магнітних і магнітооптичних властивостей т.р. проміжного шару. Використання як проміжного шару Аи в системах на основі Со і Аи призводить до різкого збільшення коерцитивної сили в порівнянні з одношаровими плівками Со. Термовідпалення зразків до 700-900 К приводить до збільшення розміру зерен і коерцитивності. Для плівкової системи  $Co(10)/Au(20)/Co(10)/\Pi$  в невідпаленому стані петля гістерезису має прямокутну форму, а після термообробки до 700 К – втрачає попередню форму. Це можна пояснити дифузією частини атомів Со у Ац, і утворенням т.р.-(Ац, Со) з елементами гранульованого стану по всьому об'єму плівкової структури. Така форма петлі гістерезису залежить від товщини магнітного шару Со. Залежність коерцитивності від кута повороту зразка у площині дії магнітного поля для різних температур відпалювання плівкової системи типу Со/Аи/Со показана на рис. 4.14.

Всі три плівкові зразки, дані для яких подані на рис. 4.14, мають майже однаковий атомний вміст концентрації Со ( $c_{Co} = 80-90$  ат. %) з різною

товщиною магнітних і немагнітних шарів (загальна товщина плівки – d = 18-68 нм). Коерцетивність таких зразків змінюється від 8 до 14 мТл (d = 46-68 нм) та від 5 до 40 мТл в зразку Co(6)/Au(5)/Co(7)/П (d = 18 нм) і залежить від температури відпалювання. Максимальні значення коерцитивної сили спостерігаються у відпалених зразках до  $T_e = 700-900$  К. Це можна пояснити утворенням т.р.-(Au, Co) з елементами гранульованого стану. Максимальна анізотропія спостерігається в невідпаленій системі із d = 18 нм. Підвищення температури відпалювання приводить до поліпшення (збільшення) доменної структури плівки і збільшення величини коерцитивної сили.

При вивченні магніторезистивних властивостей можна також простежити появу в деяких зразках анізотропного магнітоопору. АМО спостерігається при переході від однієї геометрії вимірювання до іншої. Опір феромагнітного матеріалу залежить від відносної орієнтації векторів намагніченості і густини електричного струму. Аналіз даних стосовно АМО вказує на загальну картину збільшення його значення при зменшенні загальної концентрації атомів магнітних компонент у тришарових системах.

Аналізуючи дані МО для зразків типу Co/Ag/Co/П, можна говорити про збільшення значення МО у всіх трьох геометріях вимірювання при термообробці до 800 К і часткове зменшення після відпалювання до 900 К. Результати роботи свідчать про вплив атомів Со на МО в цій системі. Була встановлена залежність величини МО для гранульованих сплавів, що утворюються після відпалення Co(5)/Ag(d)Co(5)/П до  $T_e = 800-900$  К. Максимальна величина  $B_C$  спостерігається при концентрації атомів Со на рівні 40–60 ат. %.

Проаналізувавши особливості отриманих результатів, для систем на основі Со і Ag або Au можна говорити про деякі закономірності магніторезистивних та магнітооптичних властивостей зразків.

Залежність МО та МОКЕ від загальної концентрації компонент в зразках дозволяють простежити утворення т.р., а в деяких випадках і гранульованого стану. Так, форма залежностей МОКЕ для плівкових систем на основі Со та Си



Рис. 4.14. Залежності коерцитивної сили  $B_C$  одношарової плівки Со/Au/Co/П від кута повороту зразка  $\Theta$  у зразках з різною концентрацією Со: 80 ат. % (а); 88 ат. % (б); 90 ат. % (в) Температура відпалювання  $T_e$ , К: 300 (крива 1), 700 (крива 2), 800 (крива 3) та 900 К (крива 4)

у не відпаленому та відпаленому станах майже не відрізняється, що свідчить про утворення т.р. на етапі формування зразка. У випадку плівкових зразків на основі Со або Fe та Ag або Au утворення т.р. з елементами гранульованого стану відбувається після термообробки до 700 К. При 700 К формується невпорядкований т.р., про що свідчить зменшення величини МО та форма гістерезису. При подальшому термовідпаленні відбувається ріст значення МО. Даний факт свідчить про утворення т.р. з елементами гранульованого стану.

При дослідженні магніторезистивних властивостей також можна простежити певну анізотропію магнітоопору зразків. При переході від однієї геометрії вимірювання до іншої спостерігається анізотропія величини магнітоопору. Наприклад, на рис. 4.15 наведені залежності магнітоопору тришарової системи Ag(5)/Fe(10)/Ag(5)/П при різних кутах вимірювання. Слід відмітити, що тут і далі під кутом повороту мається на увазі поворот, при якому перехід від відбувається перпендикулярної до поперечної геометрії вимірювання МО. Зміна величини магнітоопору у цьому випадку пов'язана зі зміною середньої довжини вільного пробігу  $\lambda_0$  електронів провідності під дією кристалографічної наявності анізотропії сили Лоренца при V тонких феромагнітних шарах.

Результати магнітних властивостей у плівкових системах на основі Ag та Со наведені на рис. 4.16. Залежності магнітного моменту доменів від індукції магнітного поля мають класичний вигляд петлі намагнічення (петля гістерезису). По осі *OX* визначаємо величину поля насичення  $B_S$  та перемагнічення  $B_C$  (або коерцитивну силу), а по осі *OY* – магнітний момент доменів плівкового зразка. Залежності були побудовані для різних кутів орієнтації підкладки відносно напряму магнітного поля: 0° відповідає повздовжній геометрії, а 90° – перпендикулярній. Була проведена серія досліджень магнітних характеристик плівкових зразків на основі магнітних і благородних металів, отримані залежності коерцитивної сили та поля насичення від кута повороту зразка. На рис. 4.16 представлені залежності



Рис. 4.15. МО тришарової системи Ag(5)/Fe(10)/Ag(5)/П при різних кутах вимірювання

магнітного моменту магнітних доменів від індукції магнітного поля плівкових зразків Co(2)/Ag(2)/Co(3)/П та Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П при повороті зразка в магнітному полі на кут від 0 до 75°, які були термовідпалені до  $T_{e} = 800$  К. При наближенні до перпендикулярної геометрії, коли вектор магнітної індукції зовнішнього поля перпендикулярний до зразка, величини  $B_{C}$  та  $B_{S}$  збільшуються в 3–4 рази, що свідчить про наявність вісі легкого намагнічення (ВЛН) в даних системах в площині зразка. Поле насичення при повороті на кут від 0° до 45° для даних зразків залишається майже незмінним і становить 7-10 мТл для випадку плівкового зразка Co(2)/Ag(2)/Co(3)/П та 10-15 мТл для Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П. При більших кутах повороту зразка (60°– 75°) поле насичення зростає і становить 15–20 мТл у першому випадку та 18– 25 мТл у другому.

На рис. 4.17 представлені залежності  $B_C$  та  $B_S$  від кута повороту для зразків Co(10)/Ag(3)/Co(7)/П (a, б) і Co(2)/Ag(2)/Co(3)/П (в, г). Числове значення  $B_C$  даних характеристик при кутах повороту зразка 60°-75° зростає з 10 до 18 мТл, а  $B_S$  зростає з 8 до 22 мТл. Отримані дані корелюють з даними магніторезистивних вимірювань для даних плівкових зразків і можна пояснити поворотом доменів відносно магнітного поля, в якому знаходиться зразок.

В поперечній геометрії, як і в поздовжній геометрії, спостерігається найменше значення поля насичення, що підтверджує зроблений раніше висновок про наявність ВЛН в площині зразка. На користь цього факту


Рис. 4.16. Залежність магнітного моменту магнітних доменів від індукції магнітного поля плівкових зразків Co(2)/Ag(2)/Co(3)/П (а) та Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П (б) при повороті зразка в магнітному полі на кут від 0 до 75°



Рис. 4.17. Залежність коерцитивної сили ( $B_C$ ) та намагніченості насичення ( $B_S$ ) від кута повороту для зразків Co(10)/Ag(3)/Co(7)/П (a, б) і Co(2)/Ag(2)/Co(3)/П (в, г)

свідчить також і переважання величини МО в геометріях, коли вектор В паралельний площині зразка. На рис. 4.18 представлені залежності МО від індукції магнітного поля для плівкових систем Co (8)/Ag(4)/Co(10)/П і  $Co(5)/Ag(2)/Co(5)/\Pi$ . Як видно 3 рис. 4.18, максимальні значення коерцитивної сили (поля, в якому спостерігаються максимуми MO) спостерігаються в перпендикулярній геометрії ( $B_C = 200$  мТл для зразка Со(5)/Аg(2)/Со(5)/П). При цьому в поперечній геометрії, а в більшій мірі в поздовжній геометрії, спостерігаються мінімальні значення поля насичення, що підтверджує зроблений раніше висновок про наявність ВЛН в площині зразка. На користь цього факту свідчить також і переважання величини МО в геометріях, коли вектор В паралельний площині зразка. Звертає на себе увагу відсутність АМО в трьох геометрії, що є ознакою ГМО.

На рис. 4.19 представлені «широкі» залежності МО при поздовжній геометрії вимірювання для плівкових систем Co(10)/Ag(20)/Co(10)/П та Co(6)/Au(15)/Co(5)/П відпалених до  $T_s = 800$  K, у яких відбулося утворення гранульованого стану. Було показано, що для МО плівкових гранульованих сплавів на основі Ag та Co характерна величина 0,40–0,50 % при загальній концентрації  $c_{Co} = 38$  ат.%, а при збільшенні концентрації атомів Co величина MO спочатку зростає майже в три рази (MO = 1,5–1,8%;  $c_{Co} = 60$  ат.%), а потім зменшується (MO = 0,4–0,5 % при  $c_{Co} = 70$  ат. %) (рис. 4.19).

Беззаперечним фактом є вплив концентрації атомів Со на величину МО. Було встановлено, що розмірні залежність магнітоопору для гранульованих сплавів, сформованих після термовідпалювання тришарових систем Co(5)/Ag(x)Co(5)/П до  $T_{\rm B} = 800$  та 900 К, в трьох геометріях вимірювання мають нелінійних характер. Максимум на залежностях спостерігається при  $d_{\rm Ag} = 10$  нм для всіх трьох геометрій. Концентрація атомів Ag та Co при цьому становить 54 та 46 ат.% відповідно. Спостерігається деяка не відповідність, а саме має місце зміщення максиму на залежностях в бік більших концентрацій

На рис. 4.20 представлені залежності МО плівкових зразків на основі Fe та



Рис. 4.18. Залежність МО від прикладеного магнітного поля для плівкових систем Co(8)/Ag(4)/Co(10)/П (а, в, д) та Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П (б, г, е) для трьох геометрій вимірювання – поздовжній (а, б), поперечній (в, г) та перпендикулярній (д, е)

Au. В невідпаленому стані це тришарові структури Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П (а-в) та  $T_e = 700-900 \text{ K}$ Fe(10)/Au(15)/Fe(10)/Π (г-е). При термовідпаленні до утворюється т.р.-(Au, Fe) загальною концентрацією магнітної компоненти 36 та 66 ат. % відповідно. В двох геометріях вимірювання (поздовжній та поперечній) спостерігається гістерезисна поведінка магнітоопору. Величина МО у відпалених до 700 К відносно свіжосконденсованих дещо зменшується, а після термовідпалення до  $T_e = 800$  К знову зростає. Такі зміни можна пояснити фазоутворенням в експериментальних зразках. Формування т.р.-(Au, Fe) приводить до збільшення МО при 800 К. Ріст кристалітів при  $T_e = 900$  К приводить до зменшення ефективності СЗРЕ, а це, у свою чергу, впливає на величину МО.

В перпендикулярній геометрії вимірювання з'являються ознаки АМО. Порівняльний аналіз залежності АМО від загальної концентрації атомів Fe показав, що із зменшенням концентрації величина АМО збільшується. Процес термообробки зразків приводить до утворення т.р., і як наслідок, АМО зникає (для зразка з  $c_{Fe} = 36$  ат. % при 700 К і при  $c_{Fe} = 66$  ат. % при 800 К).

В таблицях 4.3-4.5 представлені результати вимірювання МО в плівкових зразках на основі феромагнітних і благородних металів з різним концентраційним



Рис. 4.19. Залежність МО від індукції магнітного поля при поздовжній геометрії вимірювання для плівкових систем Co(10)/Ag(20)/Co(10)/П (a) та Co(6)/Au(15)/Co(5)/П (б), відпалених до  $T_e = 800$  К

вмістом магнітної компоненти (Со або Fe). Наприклад, діапазон концентрацій для зразків на основі Со та Ад лежить в проміжку від 31 до 82 ат. %, що дає i3 можливість проаналізувати випадки як недостатнім вмістом Co (розбавлений т.р.), так і перенасичені т.р. з елементами гранульованого стану. Загальна товщина плівки змінювалася в не широкому діапазоні і становила 15-40 нм. Аналізуючи отримані результати можна сказати, що в діапазонах концентрацій 30-40 та 65-80 ат. % спостерігається мінімальне значення МО (0,3-0,4 та 0,25-0,3 % відповідно). Максимальні значення (MO = 0,7-1,8 %) спостерігаються в зразках з  $c_{Co} = 40-60$  ат. %. Це можна пояснити утворенням в даному випадку термостабільних т.р. з елементами гранульованого стану Со. В інших випадках спостерігається надлишок або недостача атомів немагнітної компоненти. Така сама ситуація спостерігається і у випадку плівкових зразків на основі Fe та Au. Був досліджений діапазон середніх та високих концентрацій магнітної компоненти. Так, при *c*<sub>Fe</sub> = 36–66 ат. % МО становить 0,2–0,43 %, а при  $c_{\text{Fe}} = 78-93$  ат. % МО не перевищує і 0,1 %.

Максимальні значення МО спостерігаються у термовідпалених до  $T_{e} = 900$  К зразках при поперечній геометрії на основі Со та Ag (Co(5)/Ag(10)/Co(5)/П – MO = 1,5–1,8 %). Мінімальні значення спостерігаються в невідпалених та відпалених до  $T_{e} = 700$  К зразках у повздовжній геометрії вимірювання (для зразка Co(5)/Ag(10)/Co(5)/П – MO = 1,25 %).

Крім магнітоопору для даних плівкових зразків були досліджені ще й такі характеристики як чутливість плівкового зразка до магнітного поля та АМО. Чутливість розраховувалася за формулою (2.5), а АМО – за формулою (2.6). Методика розрахунку більш детально описана в підрозділі 2.3.

Максимальне значення  $S_B$  буде спостерігатися у плівкових зразках з максимальним значенням МО та мінімальним значенням поля насичення. Як видно з рис. 4.20-4.21 найменше значення поля насичення спостерігається в поперечній геометрії вимірювання МО. Тому, відповідно, максимум значення  $S_B$  буде спостерігатися саме в цій геометрії. Якщо говорити про температуру відпалювання,





поперечній (б) та перпендикулярній (в)

## Таблиця 4.3

115

Величина магнітоопору у трьох геометріях вимірювання гранульованих сплавів, сформованих після термовідпалювання тришарових систем Co/Ag/Co до T<sub>в</sub> = 700, 800 і 900 К

	Загальна							MO, %				
Зразок	товшина.	с <sub>со</sub> , ат.%		П03,	довжн. г	еом.	попереч. геом.			перпенд. геом.		
opusora	<i>d</i> , нм			700 K	800 K	900 K	700 K	800 K	900 K	700 K	800 K	900 K
			MO, %	-	0,55	0,50	-	0,60	0,60	-	0,45	0,40
Co(5)/Ag(5)/Co(5)/П	15	75	S <sub>B</sub> , %/Тл	-	0,02	0,015	-	0,03	0,01	-	0,012	0,01
			AMO	-			-			-		
			MO, %	1,25	1,35	1,60	1,4	1,5	1,80	0,71	0,9	0,75
Co(5)/Ag(10)/Co(5)/П	20	60	S <sub>B</sub> , %/Тл	0,040	0,055	0,043	0,035	0,061	0,032	0,021	0,026	0,022
			AMO	-	-		-			-		
	25		MO, %	0,50	0,55	0,45	0,6	0,7	0,60	0,50	0,50	0,40
Co(5)/Ag(15)/Co(5)/Π		50	S <sub>B</sub> , %/Тл	0,023	0,048	0,025	0,028	0,055	0,031	0,027	0,051	0,022
			AMO	3,568			7,569			4,145		
	30	75	MO, %	0,25	0,25	-	0,35	0,45	-	0,25	0,20	-
Co(15)/Ag(10)/Co(5)/Π			S <sub>B</sub> , %/Тл	0,012	0,033	-	0,14	0,038	-	0,012	0,035	-
			AMO	-			-			-		
	35	38	MO, %	0,30	0,55	0,40	0,5	0,55	0,55	0,40	0,50	0,45
Co(5)/Ag(25)/Co(5)/П			S <sub>B</sub> , %/Тл	0,015	0,067	0,02	0,018	0,07	0,021	0,016	0,066	0,022
			AMO	2,965	2,965		6,844			3,086		
		60	MO, %	0,70	0,79	0,75	0,70	0,78	0,72	0,65	0,72	0,65
Co(10)/Ag(20)/Co(10)/Π	40		S <sub>B</sub> , %/Тл	0,031	0,058	0,033	0,029	0,064	0,025	0,022	0,054	0,018
			AMO	4,125			7,628			3,826		
Со(3)/Аg(20)/Со(3)/П			MO, %	0,16	0,2	0,16	0,12	0,31	0,6	0,06	0,14	0,24
	26	31	S <sub>B</sub> , %/Тл	0,012	0,031	0,009	0,01	0,028	0,04	0,007	0,016	0,008
			AMO	1,458	1,458			3,561			1,326	
		82	MO, %	0,14	0,16	0,06	0,16	0,3	0,25	0,06	0,6	-
Co(15)/Ag(10)/Co(15)/Π	40		S <sub>B</sub> , %/Тл	0,011	0,028	0,006	0,013	0,035	0,015	0,005	0,042	-
			AMO	1,236			3,752			-		

Таблиця 4.4

116

Величина магнітоопору у трьох геометріях вимірювання гранульованих сплавів, сформованих після

термовідпалювання тришарових	систем Fe/Au/Fe до T <sub>в</sub> = 700, 800 і 900 К
------------------------------	--

	<sup>е,</sup> Плівкова система %		<i>T</i> = 300 K			$T_{e} = 700 \text{ K}$			$T_{s} = 800 \text{ K}$			$T_{g} = 900 \text{ K}$		
<i>с<sub>Fe</sub>,</i> ат.%			геометрія вимірювання			геометрія вимірювання			геометрія вимірювання			геометрія вимірювання		
			II		+	=	Т	+	II		+	II	T	÷
		MO,%	0,43	0,13	0,11	0,22	0,16	0,06	0,19	0,06	0,025	0,12	0,4	0,1
36	Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П	<b>В</b> <sub>s</sub> , мТл	500	200	400	480	250	400	380	450	500	500	430	500
		S <sub>в</sub> , %/Тл	0,007	0,006	0,002	0,004	0,006	0,001	0,003	0,001	0,0006	0,003	0,009	0,002
		AMO, %	2,229			1,547			0,924			0,533		
		MO,%	0,22	0,05	0,04	0,09	0,08	0,03	0,22	0,1	0,03	0,15	0,4	0,12
66	Fe(10)/Au(15)/Fe(10)/Π	<b>В</b> <sub>s</sub> , мТл	500	500	500	400	500	500	400	480	480	500	400	400
		S <sub>в</sub> , %/Тл	0,004	0,001	0,007	0,001	0,002	0,001	0,004	0,002	0,001	0,001	0,005	0,003
		AMO, %	2,977			6,865			2,162			1,238		

117

# Величина магнітоопору у трьох геометріях вимірювання гранульованих сплавів, сформованих після термовідпалювання тришарових систем Fe/Au/Fe до *T*<sub>в</sub> = 700, 800 і 900 К

Зразок	Загальна товщина	(F	MO, %									
	<i>d</i> , нм	at.%	поздо	ЭВЖН.	геом.	попереч. геом.			перпенд. геом.			
			700 K	800 K	: 900 K	700 K	: 800 K	900 K	700 K	800 K	900 K	
Fe(5)/Au(4)/Fe(5)/Π	14	78	0,08	0,04	0,02	0,04	0,05	0,05	0,02	0,03	0,03	
Fe(26)/Au(6)/Fe(25)/Π	57	92	0,12	0,08	0,1	0,04	0,06	0,035	-	0,04	0,02	
Fe(20)/Au(4)/Fe(19)/Π	43	93	0,1	0,08	0,06	0,04	0,06	0,05	0,02	0,02	0,02	
Fe(12)/Au(5)/Fe(11)/Π	28	86	0,07			0,03			0,02			

то при 700 та 900 К чутливість має мінімальне значення і суттєво зростає (у 2–3 рази) при  $T_{e} = 800$  К.

У майже всіх досліджуваних зразках при збільшенні температури термовідпалення спостерігається незначне зменшення величини значення МО. Тому в таких зразках з'являється новий ефект – анізотропний магнітоопір (АМО). Методика розрахунку цього ефекту представлена в підпункті 2.3.2. Максимальне значення АМО в системі на основі Со та Ад спостерігається в поперечній  $T_{e} = 800 \text{ K}$ геометрії при i становить для зразка  $Co(10)/Ag(20)/Co(10)/\Pi$  з  $c_{Co} = 60$  ат. % 7,628 %. У випадку Fe та Au  $(Fe(10)/Au(15)/Fe(10)/\Pi, c_{Fe} = 60 \text{ ат. }\%)$  величина AMO = 6,865 %.

## 4.3. Апробація теоретичних моделей [164, 165]

Важливою частиною роботи є апробація отриманих результатів. В літературному огляді приділено цьому питанню один із пунктів розділу. Були розглянуті існуючі теоретичні моделі розмірних ефектів в електрорезистивних властивостях багатошарових плівок. Дехтяруком Л.В. була запропонована теоретична модель ТКО для двошарових зразків, яка враховувала ефекти теплового розширення шарів металу. Пізніше дана модель була узагальнена авторами робіт [40, 41] на випадок мультишарової системи. Велися дослідження з розробки теоретичної моделі тензорезистивних властивостей в першу чергу для двошарових структур. В даному підрозділі приділена увага розробці моделей ТКО та КТ для гранульованих сплавів.

З цією метою були проведені розрахунки ТКО та КТ за допомогою відповідних феноменологічних моделей. Для цього використовувалася феноменологічна модель ТКО гранульованих плівкових сплавів для запропонована авторами роботи [113] та власна феноменологічна модель КТ для гранульованих плівкових сплавів, розроблена на основі положень, які використовувались при формулюванню моделі ТКО.

## 4.3.1. Феноменологічна модель термічного коефіцієнту опору для гранульованих плівкових сплавів

Одним із варіантів врахування впливу структурно-фазового стану на електрофізичні властивості плівкових систем може слугувати порівняння експериментальних величин із розрахунковими. Спроба врахування такого впливу на величину ТКО здійснена у [166], де запропоновані феноменологічні моделі електрофізичних властивостей:

– для двошарової плівкової системи із індивідуальністю окремих шарів («біпластина»);

– для гомогенної системи у вигляді плівкового сплаву по всій товщині;

- та для гранульованого сплаву, мова про який буде йти нижче.

В основі феноменологічної моделі електрофізичних властивостей гранульованих плівкових сплавів, запропонованої авторами [113], лежать наступні положення:

– плівковий зразок моделюється у вигляді шаруватої структури, окремий шар (рис. 4.22 а) якої подається у вигляді паралельного з'єднання трубок струму, кожна з яких складається із послідовного з'єднання фрагментів т.р. і гранул із середнім радіусом  $r_0$  (рис. 4.22 б);

розрахунок опору гранули (*R<sub>e</sub>*) сферичної форми проводиться шляхом інтегрування елементу опору по об'єму гранули:

$$\rho = 4,65(2+\alpha) \cdot \rho_{mp} \cdot \left(4 + \frac{4,65\pi l\rho_{mp}}{r_0 n \left(\rho_e + \alpha \rho_{mp}\right)}\right)^{-1} = , \qquad (4.6)$$
$$= A \left(2+\alpha\right) \rho_{mp} \cdot \left(4 + \frac{B\rho_{mp}}{\rho_e + \alpha \rho_{mp}}\right)^{-1}$$

де A = 4,65 і  $B = 4,65 \pi$  – параметри форми зразка; n – лінійна концентрація фрагментів т.р. або гранул, тобто  $n = l/r_0 = l/\Delta l_{mp}$ ;  $\alpha = \frac{\Delta l_{mp}}{r_o}$  – т.зв. ступінь ґранулярності зразка ( $\Delta l_{mp}$  – середня довжина

фрагменту т.р. в трубці струму; r<sub>0</sub> – середній радіус гранули);

*ρ*<sub>2</sub> і *ρ*<sub>mp</sub> – питомий опір матеріалу гранул і фрагментів т.р.;

 $\beta_{e}$  і  $\beta_{mp}$  – ТКО матеріалу гранул і фрагментів т.р. відповідно.



Рис. 4.22. Схематичне зображення окремого шару (а), трубки струму (1), її поперечного перерізу (б) із чотирма боковими (2) та центральним (3) стержнями. *I* – сила струму. Із роботи [113]

Співвідношення для розрахунку  $\beta$ , отримане авторами [113], нами представлено у такому зручному для подальшого аналізу вигляді:

$$\beta_{posp} = \beta_{mp} - \frac{4\beta_{e}\rho_{e}}{4\rho_{e} + \alpha\rho_{mp}} - \frac{\alpha\beta_{mp}\rho_{mp}}{4\rho_{e} + \alpha\rho_{mp}} + \frac{\beta_{e}\rho_{e} + \alpha\beta_{mp}\rho_{mp}}{\rho_{e} + \alpha\rho_{mp}} \,. \tag{4.7}$$

Співвідношення (4.7) можна спростити у трьох граничних випадках:

$$\beta_{posp} = \beta_{mp} - \frac{4\beta_{c}\rho_{c}}{\alpha\rho_{mp}}$$
 при  $\alpha >> 1;$  (4.8)

$$\beta_{posp} = \beta_{mp} - \frac{\alpha \beta_{mp} \rho_{mp}}{4\rho_{e}}, \alpha \ll 1; \qquad (4.9)$$

$$\beta_{posp} = \beta_{mp} - \frac{4\beta_{e}\rho_{e} + \beta_{mp}\rho_{mp}}{4\rho_{e} + \rho_{mp}} + \frac{\beta_{e}\rho_{e} + \beta_{mp}\rho_{mp}}{\rho_{e} + \rho_{mp}}, \ \alpha \cong 1.$$
(4.10)

Апробація даної моделі була проведена на прикладі двошарових систем Ag/Co/П, в яких після термовідпалювання до 700 К стабілізується гранульований стан. Результати розрахунків  $\beta$  для двокомпонентних плівкових систем Ag/Co/П з концентрацією магнітної компоненти в проміжку 28–78 ат. % та порівняння їх з експериментальними даними наведені в таблиці 4.6. Ці результати із точністю до 12 % узгоджуються із експериментальними. Розбіжність розрахованих та експериментальних даних для плівкових зразків на основі Ag та Co складає (3–12 %) (табл. 4.6).

Таблиця 4.6

Плівкова система	с <sub>Со</sub> , ат.%	<i>ρ<sub>Co</sub></i> ·10 <sup>7</sup> , Ом·м	<i>р<sub>тр</sub></i> ∙10 <sup>7</sup> , Ом∙м	$\beta_{\rm Co} \cdot 10^3,$ ${\rm K}^{-1}$	$\beta_{mp} \cdot 10^3,$ $K^{-1}$	$\beta_{posp} \cdot 10^3,$ $K^{-1}$	$\beta_{e\kappa c} \cdot 10^3,$ $K^{-1}$	$\frac{\left \beta_{e\kappa c}-\beta_{posp}\right }{\beta_{e\kappa c}},\%$
Ag(25)/Co(40)/Π	71	5,7	5,51	1,49	1,39	1,04	1,18	12,0
Ag(40)/Co(40)/Π	61	5,2	4,30	1,45	1,50	1,26	1,41	10,9
Аg(15)/Co(7)/П	41	7,0	6,41	0,90	1,13	1,20	1,15	4,3
[Ag(32)+Co(8)]/П	28	6,9	5,89	0,90	1,23	1,32	1,5	11,8
[Ag(12)+Co(29)]/Π	78	5,2	5,53	1,28	1,29	1,29	1,21	6,7
[Ag(26)+Co(30)]/П	60	5,4	3,48	1,28	1,29	1,29	1,25	3,0

Порівняння розрахункових величин β на основі співвідношеннь (4.8-4.10) із експериментальними даними

## 4.3.2. Феноменологічна модель коефіцієнту тензочутливості для гранульованих плівкових сплавів

В даному підрозділі представлені основи феноменологічної моделі коефіцієнта тензочутливості для гранульованих плівкових сплавів та порівняння отриманих результатів з експериментальними. За основу було

взято теоретичну модель для розрахунку *р* гранульованого сплаву, яка запропонована в роботі [163].

В основу теоретичної моделі нами взято співвідношення загального вигляду для *р* зразка у вигляді гранульованого т.р., який моделюється як шарувата структура (рис. 4.22) із паралельним з'єднанням окремих шарів. Відмітимо, що в [113] розглядались гранули сферичної форми, хоча, наприклад, в роботі [163] вони моделюються кубічною або близькою до кубічної форми.

Після диференціювання по повздовжній деформації ( $\varepsilon_l$ ) формули (4.6) отримуємо співвідношення загального вигляду для коефіцієнту поздовжньої тензочутливості  $\gamma_l^{\rho}$ , де індекс « $\rho$ » вказує на те, що КТ виражається через питомий опір:

$$\gamma_{l}^{\rho} = \frac{d \ln \rho}{d\varepsilon_{l}} = \frac{d \ln (2 + \alpha)}{d\varepsilon_{l}} + \frac{d \ln \rho_{mp}}{d\varepsilon_{l}} - \frac{B \cdot \frac{\rho_{mp} \gamma_{l}^{\rho_{mp}} \left(\rho_{\varepsilon} + \alpha \rho_{mp}\right) - \rho_{mp} \cdot \gamma_{l}^{\rho_{\varepsilon}} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \varepsilon_{l}} \rho_{mp} + \alpha \cdot \gamma_{l}^{\rho_{mp}} \cdot \rho_{mp}\right)}{\left(\rho_{\varepsilon} + \alpha \rho_{mp}\right)^{2}} + \frac{B \cdot \rho_{mp}}{\left(\rho_{\varepsilon} + \alpha \rho_{mp}\right)}$$
(4.11)

Співвідношення (4.11) дещо спрощується, якщо врахувати, що параметр *α* не залежить від деформації:

$$\frac{d\alpha}{d\varepsilon_l} = \frac{d}{d\varepsilon_l} \left( \frac{\Delta l_{mp}}{r_0} \right) = \frac{1}{r_0} \left( -\mu_{mp} \cdot \Delta l_{mp} + \mu_{\varepsilon} \cdot \Delta l_{mp} \right) \cong 0, \tag{4.12}$$

оскільки коефіцієнти Пуассона для т.р. і матеріалу гранул приблизно одинакові (відомо, що для металів  $\mu = 0,25-0,35$  [48]). У результаті формула (4.11) спрощується до вигляду:

$$\gamma_{l}^{\rho} = \gamma_{l}^{\rho_{mp}} - \frac{\rho_{mp}\gamma_{l}^{\rho_{mp}} \left[\rho_{e} + \alpha\rho_{mp}\left(1 - \gamma_{l}^{\rho_{mp}}\right)\right]}{\left(\rho_{e} + \alpha\rho_{mp}\right)^{2} \left(4 + \frac{B \cdot \rho_{mp}}{\rho_{e} + \alpha\rho_{mp}}\right)}.$$
(4.13)

При аналізі (4.13) ми розглянули три граничні випадки ( $\alpha >> 1$ ,  $\alpha \cong 1$  і  $\alpha << 1$ ) як і у випадку аналізу ТКО.

У першому випадку співвідношення (4.13) спрощується до вигляду:

$$\gamma_l^{\rho} = \gamma_l^{\rho_{mp}} - \left(1 - \frac{\alpha \cdot \left(1 - \gamma_l^{\rho_{mp}}\right)}{4\alpha + B}\right),\tag{4.14}$$

тобто при  $\alpha >> 1$  величина  $\gamma_l^{\rho}$  майже повністю визначається тензорезистивними властивостями т.р., оскільки типове значення  $\gamma_l^{\rho_e} = 1 - 2$ .

У другому граничному випадку ( $\alpha \cong 1$ ) співвідношення (4.13) спрощується до вигляду:

$$\gamma_{l}^{\rho} \cong \gamma_{l}^{\rho_{mp}} - \frac{\rho_{mp} \gamma_{l}^{\rho_{mp}} \left[ \rho_{e} + \rho_{mp} \left( 1 - \gamma_{l}^{\rho_{e}} \right) \right]}{\left( \rho_{e} + \alpha \rho_{mp} \right)^{2} \left( 4 + \frac{B \cdot \rho_{mp}}{\rho_{e} + \alpha \rho_{mp}} \right)}, \tag{4.15}$$

тобто приходимо до висновку, аналогічному випадку  $\alpha >> 1$ .

При умові *α* << 1 ми отримуємо такий же результат:

$$\gamma_l^{\rho} = \gamma_l^{\rho_{mp}} - \frac{\rho_{mp} \rho_c \gamma_l^{\rho_{mp}}}{4\rho_c^2 + B}.$$
(4.16)

Апробація даної феноменологічної моделі була проведена для плівкових зразків на основі Co(Fe) та Ag(Au), в яких після термовідпалювання до 700 К і вище стабілізується т.р. з елементами гранульованого стану. Результати розрахунків КТ за феноменологічною моделлю та визначених експериментально для 5-го циклу «навантаження / зняття навантаження» для даних зразків наведено в таблиці 4.7.

Таблиця 4.7

Зразок	с <sub>Со</sub> , ат.%	α	$\gamma_l^{ ho_{mp}}$	$\gamma_l^{ ho}$	$rac{\left  \gamma_l^{ ho_{mp}} - \gamma_l^{ ho}  ight }{\gamma_l^{ ho_{mp}}} ,  \%$
Ag(20)/Co(10)/П	58	61,9	4,41	5,21	18,3
Ag(25)/Co(40)/П	81	17,5	2,54	2,86	12,5
Ag(15)/Co(40)/Π	88	28,7	3,93	4,58	16,5
Ag(18)/Co(17)/Π	73	34,3	4,25	4,98	17,3
Аg(40)/Co(20)/П	58	41,8	2,37	2,68	13,3

Результати розрахунків  $\gamma_l^{
ho}$  за феноменологічною моделлю для КТ

Висновок про основний внесок у загальну величину КТ лише т.р., як матриці гранульованої системи, можна якісно пояснити, виходячи із концепції [167] та уявлень про балістичне (безрозсіювальне) перенесення заряду (див., наприклад, [168]). При русі електрона він може стикатися з іншими електронами або розсіюватися на коливаннях решітки твердого тіла, її дефектах або на межах розділу матеріалів. При цьому він неминуче змінює свій стан. Середня відстань між послідовними розсіюваннями називається довжиною вільного пробігу. У наноструктурах все кардинально відрізняється від макросистем, оскільки рух зарядів відбувається без розсіювання. Таке Згілно перенесення зарядів називається балістичним. [167], 3 V тензорезисторі, у якому в ролі провідної фази виступають металеві частинки, наприклад, в діелектричній матриці, ефект тензочутливості реалізується на

проміжку в одну середню довжину вільного пробігу електронів ( $\lambda_0$ ). Оскільки розмір гранул завжди буде менше  $\lambda_0 (r_0/\lambda_0 < 1)$ , то ми приходимо до висновку, що всередині гранули реалізується балістичний механізм електроперенесення, і тому деформаційний коефіцієнт  $\lambda_0$ , який дає основний внесок у величину КТ,  $\gamma_{\lambda_0 l} = -\frac{1}{\lambda_0} \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_l} \cong 0$ . Поряд із цим в області локалізації т.р. реалізується звичайний механізм електропровідності, який дає основний внесок у загальну величину КТ.

Якщо звернутися до літературних даних стосовно тензоефекту у плівкових системах із різною концентрацією феромагнітної компоненти (див., наприклад, [169]), то можна знайти підтвердження наших висновків. Зокрема, у плівковій системі Fe(4)/Pt(18)/П (концентрація  $c_{\text{Fe}} = 22$  ат. %), в якій утворюється розбавлений т.р. із можливою стабілізацією елементів гранульованого стану (тобто  $\alpha >> 1$ ), величина КТ в області пружної деформації дорівнює  $\gamma_l^{\rho} \cong 2,5$  одиниці. При переході до більшої концентрації  $c_{\text{Fe}} \cong 61$  ат. % (система Fe(22)/Pt(18)/П) величина  $\gamma_l^{\rho}$  не змінюється, хоча кількість атомів Fe можуть забезпечити умову  $\alpha \ge 1$ . Навіть при концентрації  $c_{\text{Fe}} \cong 71$  ат. %, коли можна говорити про виконання умови  $\alpha \ll 1$ , величина  $\gamma_l^{\rho}$  збільшується лише на 0,7 одиниці.

## Висновки до розділу 4

1. Проаналізовані експериментальні температурні залежності питомого опору, ТКО, КТ для плівкових гранульованих сплавів і т.р. на основі Со або Fe та Ag або Au та установлено їх зв'язок з особливостями структурно-фазового стану.

2. В процесі дослідження тензорезистивних властивостей було встановлено:

– середнє значення  $\bar{\gamma}_{lm}$  для плівок на основі Ag та Co змінюється в

інтервалі від 1,40 до 3,67 од. в інтервалі деформацій  $\Delta \varepsilon_l = (0 \div 1)\%$ , і від 1,49 до 4,92 при  $\Delta \varepsilon_l = (0 \div 2)$  % в залежності від концентрації магнітної компоненти в плівковому зразку. При товщині більше 50 нм при  $\varepsilon_l = 0,4$  % спостерігається перехід від пружної до пластичної деформації, про що свідчить мінімум КТ на розмірній залежності  $\gamma_{lm}(d)$ ;

– значення  $\overline{\gamma}_{lm}$  для плівок Аg/Со/П більші, ніж в одношарових зразках Аg: у плівці Ag(38)/Co(15)/П  $\overline{\gamma}_{lm}$  = 1,74, а у плівці Ag (53)/П  $\overline{\gamma}_{lm}$  = 1,45); цей результат можна пояснити наявністю інтерфейсного розсіювання на межі поділу шарів;

– перехід від пружної до квазіпружної деформації у всіх досліджуваних зразках лежить в області 0,3–0,4 % і збільшується для систем, в яких утворилися т.р. та гранульований сплав.

3. Встановлено, що відносно великі значення МО із елементами ГМО спостерігаються в плівкових системах з концентрацією магнітної компоненти на рівні 40–60 ат.%, а товщина немагнітного шару повинна становити 7–10 нм.

4. Здійснена апробація теоретичної моделі для ТКО гранульованих сплавів та запропонована теоретична модель для КТ гранульованих сплавів; розрахункові результати за теоретичною моделлю для ТКО із точністю до 12 % узгоджуються із експериментальними.

#### ВИСНОВКИ

У дисертаційній роботі проведені комплексні дослідження взаємозв'язку між структурно-фазовим станом, електрофізичними і магніторезистивними властивостями та концентрацією магнітних компонент в плівкових зразках у вигляді гранульованого сплаву, отриманого методом пошарової або одночасної конденсації з наступною термообробкою.

У роботі отримані такі результати.

1. Дослідження структурно-фазового стану плівкових зразків на основі Со або Fe i Ag або Au, отриманих пошаровою конденсацією, показало, що у свіжосконденсованих плівкових структурах зберігається індивідуальність окремих шарів. Після відпалювання до 600-700 К у всіх зразках утворюються тверді розчини атомів Co або Fe в решітці Ag або Au та виділяються гранули Co або Fe; залежність параметра гратки т.р. від загальної концентрації атомів Co або Fe не відповідає правилу Вегарда.

2. Вивчений вплив концентрації феромагнітної компоненти на структурнофазовий стан та термо-, тензо- та магніторезистивні властивості плівкових зразків:

 вдосконалена методика формування т.р. та гранульованого сплаву шляхом пошарової або одночасної конденсації компонент із наступною термообробкою;

установлено, що утворення стабільного гранульованого т.р. відбувається
 при оптимальному значенні загальної концентрації Со або Fe *c* = 40 - 60 ат.%;

– аналіз температурної (інтервал 300 – 700 К) і концентраційної (інтервал 20 – 80 ат.% Со або Fe) залежностей термічного коефіцієнту опору вказує на те, що його зменшення в першому випадку відповідає універсальній залежності ТКО від температури в металах, а його збільшення від концентрації магнітної компоненти пов'язано із поступовим розмиттям інтерфейсів та формуванням гранульованого стану;

порівняння величини ТКО для плівкових зразків однієї й тієї товщини,
 отриманих при пошаровій чи одночасній конденсації, вказує на те, що в них
 реалізується однакова гранульована структура незалежно від методики

отримання зразків.

3. При дослідженні тензорезистивних властивостей плівкових систем на основі Ag і Co отримано, що перехід від пружної до пластичної деформації відбувається при  $\varepsilon_l = 0,3 - 0,4\%$  і при цьому величина КТ для двошарових систем близько у 2 рази більша порівняно з відповідною величиною для одношарових плівок Co і Ag такої ж товщини, як і двошарової плівки. Величина КТ визначається омічним (у випадку т.р.) або балістичним (в об'ємі гранул) механізмами перенесення заряду.

4. На основі результатів досліджень магніторезистивних властивостей багатошарових плівок установлено:

– в системах на основі Со і Ag або Au при загальній концентрації атомів Со від 40 до 60 ат.% при паралельній, перпендикулярній і поперечній геометріях вимірювання спостерігається ефект ГМО з максимальною амплітудою 0,3 - 0,6 % (системи на основі Co i Ag) та 0,1 - 0,2 % (системи на основі Co i Au); у плівках на основі Fe i Au проявляється анізотропний магнітоопір величиною 0,3 - 0,4%, що свідчить про утворення недосконалої системи гранул в зразках такого типу;

– при загальній товщині плівкових сплавів від 15 до 70 нм і концентрації атомів магнітної компоненти (80 – 90 ат.%) величина коерцитивної сили змінюється від 8 до 14 мТл (системи на основі Со і Ад) та від 5 до 40 мТл (системи на основі Со і Ац), причому максимальні значення коерцитивної сили спостерігаються в зразках, які були відпалені до температур 700 – 900 К.

5. Результати досліджень магнітооптичних властивостей методом МОКЕ вказують на формування в термостабілізованих плівкових системах гранульованих твердих розчинів із можливим СЗРЕ та утворення стабільних доменів з результуючим вектором намагнічування, направленим перпендикулярно до поверхні плівок.

6. Здійснення апробації відомої феноменологічних моделі для ТКО і запропонованої у роботі для КТ вказує на задовільну відповідність розрахункових і експериментальних даних (розходження експериментальних і розрахункових даних від 10 до 15% для ТКО і від 12 до 18 % для КТ).

#### ПРИМІТКИ

Основні результати дисертаційної роботи були опубліковані разом з Проценком І.Ю., Пазухою І.М., Чешко І.В, Однодворець Л.В., Синашенко О.В.

Проценко І.Ю. – запропонував тему дисертаційної роботи та вніс визначальний внесок у постановку всіх задач. Демиденко М.Г. – брав участь у проведенні досліджень магніторезистивних та магнітооптичних властивостей т.р. на основі (Co(Fe), Ag(Au)) з елементами гранульованого стану методом МОКЕ. Дослідження магніторезистивних властивостей т.р.-(Co, Ag(Au)) методом МОКЕ здійснювалися за участі проф. Непийка С.О (Інститут фізики Університету ім. Й. Гутенберга (м. Майнц, Німеччина)).

Вважаю приємним обов'язком висловити щиру подяку своєму керівнику д.ф.-м.н., професору, зав. кафедри прикладної фізики Проценку І.Ю. за вибір тематики, постійну підтримку та зацікавленість до результатів роботи. Також хочу щиро подякувати к.ф.-м.н. Демиденку М.Г. за допомогу у проведенні магніторезистивних та магнітооптичних досліджень; проф. Непийку С.О. та завідувачу лабораторією, проф. Шонхензе Г.А. (Інститут фізики Університету ім. Й. Гуттенберга) консультації за та допомогу V проведенні експериментальних досліджень методом МОКЕ. Висловлюю щиру подяку доц., к.ф.-м.н. Однодворець, доц., к.ф.-м.н. Синашенко О.В., доц., к.ф.-м.н. Чешко І.В. та к.ф.-м.н. Пазусі І.М. за участь в обговоренні отриманих результатів. Також висловлюю щиру подяку всьому колективу кафедри прикладної фізики за дружню підтримку та обговорення результатів роботи на семінарах та конференціях.

Особливу подяку висловлюю своїм рідним за постійну підтримку.

### СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Magnetic multilayers: oscillatory interlayer exchange and giant magnetoresistance / A. Fert, A. Barthelemy, P. Etienne [et al] // J. Magn. Magn. Mater. – 1992. – V.104-107. – P. 1712–1716.

2. Giant magnetoresistance in magnetic nanostructures / A. Barthelemy, V. Cros, J.L. Duval et al. // Nanostruct. Mat. – 1995. – V.6. – P.217–226.

Parkin S. S. P. Giant magnetoresistance in magnetic nanostructures / S. S. S. Parkin
 // Annu. Rev. Mater. Sci. – 1995. – V. 25. – P. 357–388.

4. Effect of magnetic flux distribution on GMR in Ag / Co multilayers / S. Luby,
E. Majkova, A. Debnarova [et al] // Thin Solid Films – 2003. – V. 433. – P. 243–246.
5. Дехтярук Л.В. Гигантский магниторезистивный эффект в магнитоупорядоченных трехслойных пленках / Л.В. Дехтярук // Вісник СумДУ. Серія Фізика, математика, механіка – 2007. – № 2. – С. 120–126.

6. Giant magnetoresistance in heterogeneous Cu-Co alloys / A. E. Berkowitz, J. R. Mitchell, M. J. Carey [et al.] // Phys. Rew. Lett. – 1992. – V. 68. – P. 3745–3748.

7. Relaxation measurements and particle size determination in Co-Ag heterogeneous alloy films / S. B. Slade, F. T. Parker, A. E. Berkowitz // J. Appl. Phys. – 1994. – V. 75. – P. 6613–6615.

8. Giant magnetoresistance in heterogeneous Cu-Co and Ag-Co alloys films (invited)
/ A. E. Berkowitz, J. R. Mitchell, M. J. Carey [et al.] // J. Appl. Phys. – 1993. – V. 73.
– P. 5320–5325.

9. Djamal Mitra. Development of sensors based on giant magnetoresistance material /
Mitra Djamal, Ramli // Procedia Eng.– 2012. – V. 32. – P. 60–68.

 High sensitivity linear position sensor developed using granular Ag-Co giant magnetoresistances / S. Arana, N. Arana, F. J. Gracia [et al.] // Sensor. Actuat. A. – 2005. – V. 123-124. – P. 116–121.

Spin valve sensors / P. P. Freitas, F. Silva, N. J. Oliveira [et al.] // Sensor.
Actuat. - 2000. - V. 81. - P. 2-8.

12. Parkin S. S. P. Giant magnetoresistance in magnetic nanostructures / S. S. P. Parkin
// Annu. Rev. Mater. Sci. – 1995. – V. 25. – P. 357–388.

13. Bakonyi I. Electrodeposited multilayer films with giant magnetoresistance (GMR): Progress and problems / I. Bakonyi, L. Péter // Prog. Mater. Sci. – 2010. – V. 55. – P. 107–245.

14. Диаграммы состояния двойных металлических систем: Справочник в 3х Т. / [Лякишев Н. П., Алисова С. П., Банных О. А. и др.]; под ред. Н. П. Лякишева. – М.: Машиностроение, 1996. – 992 с.

15. Au-Fe alloy solidification and solid-state transformations / D. Favez, J.-D. Wagniere, M. Rappaz [et al.] // Acta Mater. – 2010. – V. 58. – P. 1016–1025.

16. Socolovsky L. M. Magnetic and structural properties of magnetoresistive  $Fe_xAu_{100-x}$  alloys produced by mechanical alloying / L. M. Socolovsky, P. H. Shingu, P. H. Shingu // Physica B – 2002. – V. 320. – P. 149–152.

17. Socolovsky L. M. Giant magnetoresistive properties of Fe/Au alloys produced by mechanical alloying / L. M. Socolovsky, F. H. Sanchez, P. H. Shingu // J. Magn. Magn. Mater. – 2001. V. 226–230. – P. 736–737.

18. Alonso J. Interfacial magnetic coupling between Fe nanoparticles in Fe-Ag granular alloys / J. Alonso, M. L. Fdez-Gubieda, G. Sarmiento [et al] // Nanotechnology. – 2012. – V. 23. – P. 025705-1–025705-10.

19. Microstructure and magnetoresistance effect of Fe-Ag granular films without any heat treatment / W. L. Li, J. N. Wang, Y. S. Yu [et al.] // J. Non-Cryst. Solids. – 2010. – V. 356. – P. 1315-1318.

20. Structural and magnetic properties of annealed FePt/Ag/FePt thin films / O. P. Pavlova, T. I. Verbitska, I. A. Vladymyrskyi [et al] // Appl. Surf. Sci. – 2013. – V. 266. – P. 100–104.

21. Fcc solid solution alloys films formed in immiscible Fe-Ag system and their mechanical behaviors / R. L. Zong, S. P. Wen, F. Zeng [et al.] // Appl. Surf. Sci. – 2007. –V. 253. – P. 2993–2998.

22. Энергетические характеристики структурной стабильности адатомов и

ультрамалых кластеров кобальта на поверхности Cu(001) / Н. А. Леванов, Д. И. Бажанов, В. С. Степанюк [и др.] // Поверхность. – 2000. – № 9. – С. 69–72.

23. Маршалек М. Структурно-фазовое состояние двухслойных пленок Co/Cu и Co/Cr / М. Маршалек, С. И. Проценко, А. Н. Чорноус // Тонкие пленки в оптике и электронике. – Харьков: ННЦ ХФТИ, 2003. – С. 205–208.

24. Касютич О. И. Структура наноразмерных систем Со/Си и механизм его формирования / О. И. Касютич, В. М. Федосюк, Т. А. Точицкий // Поверхность. – 2000. – №3. – С. 34–41.

25. Memory effect and spin-glass-like behavior in Co-Ag granular films / J. Du, B. Zhang, R. K. Zheng [et al.] // Phys. Rev. B. – 2007. – V.75. – P. 014415-1–014415-6.

26. Microstructure and electron transport properties of  $Au_xCo_{1-x}$  nano-alloys embedded polyacrytalline thin films / H. Nabika, K. Akamatsu, M. Mizuhata [et al.] // J. Mater. Chem. – 2002. – V. 12. – P. 2408–2411.

27. Vrenken H. Microstructure and properties of giant magnetoresistive granular  $Au_{80}Co_{20}$  alloys / H. Vrenken, B. J. Kooi, J. Th. M. Hosson // J. Appl. Phys. -2001. - V. 89, No 6. - P. 3381-3387.

28. Sun Zhaoqi. Microstructure and electrical properties of ultrathin gold films prepared by DC sputtering / Zhaoqi Sun, Jianguo Lü, Xueping Song // Vacuum. – 2010. – V. 85. – P. 297-301.

29. Structure, morphology and magnetic properties of Fe-Au core-shell nanoparticles / O. Pana, C.M. Teodorescu, O. Chauvet [et al.] // Surf. Sci. – 2007. – V. 601. – P. 4352–4357.

30. Amram D. Phase transformations in Au(Fe) nano- and microparticles obtained by solid state dewetting of thin Au–Fe bilayer films / D. Amram, L. Klinger, E. Rabkin // Acta Mater. – 2013. – V. 61. – P. 5130–5143.

31. Srivastava Chandan. Ultrafine scale phase separated microstructure for Ag-Fe nanoparticle / Chandan Srivastava, Shyam Kanta Sinha // Chem. Phys. Lett. – 2011. – V. 514. – P. 307–310.

32. Structure and magnetic properties of one-dimensional chainsof ferromagnetic nanoparticles / S. A. Nepijko, D. Kutnyakhov, I. E. Protsenko [et al.] // Appl. Phys. A. – 2012. – V. 109. – P. 699–702.

33. Investigation of exchange bias effect of fine cobalt particles with oxidized surface
/ S. A. Nepijko, A. Petrov, D. Kondrakhova [et al.] // J. Nanopart. Res. – 2013. –
V. 15. – P. 1603-1–1603-7.

34. Structural and magnetic investigations on metastable Ag-Fe nanophase alloy / Kalavathy Santhi, E. Thirumal, S. N. Karthick [et al.] // J. Alloy. Compd.– 2013. – V. 557. – P. 172–178.

35. Комник Ю. Ф. Физика металлических пленок. Размерные и структурные эффекты / Ю. Ф. Комник // Москва : Атомиздат. – 1979. – 264 с.

36. Mayadas A. F. Electrical-resistivity model for polycrystalline films: the case of arbitrary reflection at external surfaces / A. F. Mayadas, M. Shatzkes // Phys. Rev. B. - 1970. - V. 1 - P. 1382–1389.

37. Dimmich R. The influence of the interface electrical transport phenomena of thin metallic double-layer films / R. Dimmich, F. Warkusz // Acta Univer. Wrotsl. – 1984. – V. XLV, № 782. – P. 109–116.

38. Dimmich R. Electrical conductance and TCR of double-layer films // Thin Solid Films. – 1988. – V. 158 – P.13–24.

39. Dekhtyaruk L. V. Conductivity and the temperature coefficient of resistance of two-layer polycrystalline films / L. V. Dekhtyaruk, S. I. Protsenko, A. M. Chornous [et al.] // Ukr. J. Phys. – 2004. – V. 49,  $N_{2}$  6. – P. 587–597.

40. Дехтярук Л. В. Транспортні розмірні ефекти у двошарових полікристалічних плівках / Л. В. Дехтярук, І. Ю. Проценко, А. М. Чорноус // Успехи физ. метал. – 2007. – Т. 8, № 1. – С. 21–64.

41. Chornous A. Conductivity and the temperature coefficient of resistance of multilayered polycrystalline films / A. Chornous, L. Dekhtyaruk, M. Marszalek [et al.] // Cryst. Res. Technol. – 2006. – V. 41,  $N_{2}$  4. – P. 388–399.

42. Проценко И. Е. Расчет параметров электропереноса тонких поликристалли-

ческих пленок металлов / И. Е. Проценко // Известия ВУЗ. Физика. – 1988. – № 6. – С. 42–47.

43. Проценко И. Е. Размерная и температурная зависимости электросопротивления пленок кобальта в области промежуточных температур / И. Е. Проценко, М. Д. Смолин, В. Г. Шамоня [и др.] // УФЖ. – 1984. – Т. 29, № 6. – С. 920–921.

44. Говорун Т. П. Електрофізичні властивості плівок міді з тонким покриттям із нікелю / Т. П. Говорун, А. О. Степаненко, А. М. Чорноус // ФХТТ. – 2004. – Т. 5, № 2. – С. 280–285.

45. Protsenko I. E. Electroconductivity and tensosesillyty of multilayer films / I. E. Protsenko, A. M. Chornous, L. V. Odnodvoretz // Met. Phys. Adv. Tech. – 1999. – V. 18,  $N_{2}$  1. – P. 47–59.

46. The cause of anomaly of temperature dependence of electroresistance of the ordering nonstoichiometric FeCo compounds based on a b.c.c. lattice / S.P. Repetsky, I.M. Melnyk, V.A. Tatarenko [et al.] // J. Alloy. Compd. – 2009. – V. 480. – P. 13-15.

47. Strong electron correlations in short-range magnetic order and electrical resistance of homogeneously disordered binary crystals / S.P. Pepetsky, V.A. Tatarenko, I.M. Melnyk [et al.] // Ukr. J. Phys. – 2010. – V. 55, № 5. – P. 533–538.

48. Lasyuchenko O. Microscopic theory of tensosensibility of multilayer films /
O. Lasyuchenko, L. Odnodvorets, I. Protsenko // Cryst. Res. Technol. – 2000. –
V. 35, № 3. – P. 329–332.

49. Проценко С.І. Дослідження і прогнозування тензорезистивних властивостей плівкових систем на основі Cr, Cu i Sc / C. І. Проценко, А. М. Чорноус // Металлофиз. новейшие технол. – 2003. – Т. 25, № 5. – С. 587–601.

50. Проценко С. І. Структурно-фазовий стан, стабільність інтерфейсів та електрофізичні властивості двошарових плівкових систем / С. І. Проценко, І. В. Чешко, Д. В. Великодний [та ін.] // Успехи физ. метал. – 2007. – Т. 8, №4. – С. 247–278.

51. Физико-химические свойства элементов: Справочник / Под ред.

Г. В. Самсонова. – Киев : Наук. думка, 1965. – 807 с.

52. Sadashivaiah P. J. Structural, magnetic and electrical properties of Fe/Cu/Fefilms / P. J. Sadashivaiah, T. Sankarappa, T. Sujatha // Vacuum. – 2010. – V. 85. – P. 466–473.

53. Структура, дифузійні процеси і магніторезистивні та електрофізичні властивості плівкових матеріалів / С.І. Проценко, І.В. Чешко, Л.В. Однодворець [та ін.] // Суми : Вид-во СумДУ. – 2008. – 197 с.

54. Семенько М. П. Слабка локалізація – можлива причина особливостей температурної поведінки електроопору аморфних сплавів на основі кобальту / М. П. Семенько // Металлоф. новейшие технол. – 2014. – Т. 36, № 2. – С. 195–204.

55. Electrophysical properties of Cu/Cr and Fe/Cr film systems within elastic and plastic deformation range // S. I. Protsenko, D. V. Velykodnyi, V. A. Kheraj [et al.] // J. Mater. Sci. – 2009. – V. 44. – P. 4905–4910.

56. Tensoresistive effect in thin metal films in the range of elastic and plastic strain /
I. P. Buryk, D. V. Velykodnyi, L. V. Odnodvorets [et al.] // Tech. Phys. – 2011. –
V. 56. – P. 232–237.

57. Тищенко К. В. Особливості тензоефекту в плівках на основі ОЦК-Fe і α-Gd / К. В. Тищенко, Л. В. Однодворець, І. Ю. Проценко // Металлофиз. новейшие технол. – 2011. – Т. 33. – С. 1351.

58. Young's modulus surface and Poisson's ratio curve for cubic metals / Jian-Min Zhang, Yan Zhang, Ke-Wei Xu [et al.] // J. Phys. Chem. Solids. – 2007. – V. 68. – P. 503–510.

59. Room temperature Young's modulus, shear modulus, Poisson's ratio and hardness of PbTe–PbS thermoelectric materials / Jennifer E. Ni, Eldon D. Case, Kristen N. Khabir [et al.] // Mater. Sci. Eng. B. – 2010. – V. 170. – P. 58–66.

60. Microstructure and nanoindentation hardness of Ag/Fe multilayers / Zhu Xiaoying, Liu Xue-jing, Zeng Fei // Trans. Nonferrous Met. Soc. China. – 2010. – V. 20. – P. 110–114.

61. Fcc solid solution alloy films formed in immiscible Fe-Ag system and their

mechanical behaviors / R. L. Zong, S. P. Wen, F. Zeng [et al.] // Appl. Surf. Sci. – 2007. – V. 253. – P. 2993–2998.

62. Okuma S. Metal-insulator transition in disordered copper without and with magnetic impuritiers / S. Okuma, F. Komori, Y. Outuka // J. Phys. Soc. Jpn. – 1985. – P.2382–2391.

63. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnwtic superlattices /
M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert [et al.] // Phys. Rev. Lett. – 1988. – V. 61, № 21. –
P.2472–2476.

64. Giant magnetoresistance in magnetic nanostructures / A. Barheleny, V. Gros, J. L. Duvail [et al.] // Nanostruct. Mater. – 1995. – V. 6. – P. 217–226.

65. Третяк О.В. Фізичні основи спінової електроніки / О.В. Третяк, В. А. Львов,
О. В. Барабанов // Київ : ВПЦ "Київський університет". – 2002. – 314 с.

66. Основи спінтроніки : матеріали, прилади та пристрої / Ю. А. Куницький, В. В. Курилюк, Л. В. Однодворець [та ін.] // Суми : Вид-во СумДУ. – 2013. –126 с.

67. Nanomagnetism and Spintronics. (Ed. by Teruya Shinjo). – Elsiever, 2014. – 347 p.

68. Microstructural characterization of CoAg granular films / J. H. Du, W. J. Liu, Q. Li [et al] // J. Magn. Magn. Mater. – 1999. – V. 191. – P. 17–24.

69. Magnetic and transport properties of Co-Ag nanocrystalline particles /
E. Agostinelli, D. Fiorani, S. Foglia [et al] // Mater. Sci. Eng. C. – 2002. – V. 19. –
P.151–154.

70. Memory effect and spin-glass-like in Co-Ag granular films / J. Du, B. Zhang, R. K. Zheng [et al.] // Phys. Rev. B. – 2007. – V. 75. – P. 014415–014422.

71. Garcia-Torres Jose. Electrochemical synthesis of Co–Ag/Ag multilayered nanowires for GMR applications / Jose Garcia-Torres, Elvira Gómez, Elisa Vallés // Mater. Lett. – 2013. – V. 111. – P. 101–103.

72. Magnetic properties and giant magnetoresistance in electrodeposited Co-Ag granular films / S. Kenane, J. Voiron, N. Benbrahim [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 2006. – V. 297. – P. 99–106.

73. Characterization and giant magnetoresistance effect in cobalt-silver granular films

formed by MEVVA implantation / S. P. Wong, M. F. Chiah, W. Y. Cheung [et al.] // Nucl. Instrum. Methods B. – 1999. – V. 148. – P. 813-818.

74. Granular-type giant magnetoresistance of Co-Ag and FeCo-CoAg flms deposited with tandem method / S. Honda, H. Yamane, M. Nishino [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 1999. – V. 193. – P. 492–496.

75. Jose Garcia-Torres. Giant magnetoresistance in electrodeposited Co–Ag granular films / Jose Garcia-Torres, Elisa Vallés, Elvira Gómez // Mater. Lett. – 2011. – V. 65. – P. 1865-1867.

76. High coactivity and giant magnetoresistance of CoAg, CoCu granular films / V.
V. Hiep, N. Chau, D. M. Hong [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 2007. – V. 310. –
P. 2524–2526.

77. Perpendicular giant magnetoresistance of Ag/Co multilayers / W. P. Pratt, S.
F. Lee, J. M. Slaughter [et al.] // Phys. Rev. Lett. – 1991. – V. 66. – P. 3061–3063.
78. Giant magnetoresistance with current perpendicular to the multilayer planes / W. P. Pratt Jr., S.-F. Lee, P. Holody [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 1993. – V. 126. – P. 406–409.

79. Bass J. Jr. Current perpendicular (CPP) magnetoresistance in magnetic metallic multilayers / J. Bass Jr., W. P. Pratt Jr. // J. Magn. Magn. Mater. – 1999. – V. 200. – P. 274–289.

80. Conde F. Superparamagnetic behavior and giant magnetoresistance in as-obtained Co-Ag metastable alloys / F. Conde, C. Gomez-Polo, A. Hemando // J. Magn. Magn. Mater. – 1994. – V. 138. – P. 123–131.

81. GMR in co-evaporated Co-Ag granular thin films / M. M. Pereira de Azevedo, G.
N. Kakazei, A. F. Kravetz [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 1999. – V. 196-197. –
P. 40–42.

82. Correlation between the magnetoresistance effect, giant magnetoresistance, and properties of Co-Ag granular magnetic films / V. G. Kravets, D. Bozes, J. A. D. Matthew [et al.] // Phys. Rev. B. – 2004. – V. 65. – P. 054415-1–054415-9.

83. Giant magnetoresistance in Ag-Co granular films prepared by Electrodeposition /

S. Kenane, E. Chainet, B. Nguyen [et al.] // Electrochem. Commun. – 2002. – V. 4. – P.167–170.

84. Sang H. Study on GMR in Co-Ag thin granular films / H. Sang, Z. S. Jiang, G. Guo // J. Magn. Magn. Mater. – 1995. –V. 140–144. – P. 589–590.

85. Magnetic properties and giant magnetoresistance in electrodeposited Co-Ag granular films / S. Kenane, J. Voiron, N. Benbrahim [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 2006. – V. 297. – P.99–106.

86. Gester M. Anisotropic giant magnetoresistance in granular CoAg films / M. Gester,
K. Ounadjela // J. Magn. Magn. Mater. – 1997. – V. 165. – P. 323–325.

87. Magnetoresistance, magnetization and FMR study of Fe/Ag/Co multilayer film /
C. Birlikseven, C. Topacli, H. Z. Durusoy [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 1999. –
V. 192. – P. 258–262.

88. Magnetoresistance in Fe/Ag granular alloys produced by ion-cluster-beam and sputtering / Kenji Sumiyama, Salah Ahmed Makhlouf, Kimio Wakon [et al.] // Sci. Rep. RITU. – 1993. – V. A39. – P. 69–72.

89. Preparation and magnetic properties of Fe-Ag granular alloy / Suwen Liu, Lunxiang Yin, Yuri Koltypin [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 2001. – V. 233. – P. 195–204.

90. Magnetic properties and microstructural characterization of granular Ag-Fe films
/ M. A. Arranz, J. P. Andres, J. A. de Toro [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. – 2002. –
V. 242–245. – P. 952–954.

91. Study on anomalous magnetoresistance in nano-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ag granular system / Y. Kimishima, W. Yamada, M. Uehara [et al.] // Mater. Sci. Eng. B. – 2007. – V. 138. – P. 69–73.

92. Magnetotransport properties of magnetically soft spin-valve structures / B. Dieny,
V. S. Speriosu, S. Metin [et al.] // J. Appl. Phys. – 1991. V. 69. – P. 4774–4779.

93. Hartmann U. Magnetic Multilayers and Giant Magnetoresi stance: Fundamentals and Industrial Applications / Hartmann U.– Berlin, Germany : Springer, 1999.

94. Parkin S. S. P. Giant magnetoresi stance in as-grown epitaxial films of phase

separated Co-Cu and Co-Ag / S. S. P. Parkin // Europhys. Lett. – 1993. – V. 22. – P. 455–462.

95. S. S. P. Parkin. Magnetic domain-wall racetrack memory / S. S. P. Parkin, Masamitsu Hayashi, Luc Thomas // Science. – 2008. – V. 320. – P. 190–194.

96. Electrophysical properties of Cu/Cr and Fe/Cr film systems within elastic and plastic deformation range / S. I. Protsenko, D. V. Velykodnyi, V. A. Kheraj [et al] // J. Mater. Sci. – 2009. – V. 44, № 18. – P. 4905–4910.

97. Шабельник Ю. М. Застосуваня пошарової конденсації при формуванні гранульованих плівкових структур на основі Ag та Co / Ю. М. Шабельник, І. М. Пазуха, І. Ю. Проценко // Матеріали 6-ї Міжнародної наукової конференції [«Фізико-хімічні основи формування і модифікації мікро- та наноструктур»], (Харків, 10-12 жовтня, 2012 р.). – Харків, 2012. – С. 277–280.

98. Spherical granular structures of Ag/Co nanoparticles: Synthesis, characterization and magnetic properties / P. Saravanan, K. Srinivasa Rao, M. Premkumar [et al.] // J. Alloy. Compd. – 2011. – V. 509. – P. 3880–3885.

99. Metastable phases in Co-Ag system formed by ion beam assisted deposition at the glancing ion incidence / F. Zeng, R. L. Zong, Y. L. Gu [et al.] // Nucl. Instrum. Method. Phys. Res. B. – 2007. – V. 260. – P. 547–552.

100. Ogawa Tomoyuki. Simultaneous agglomeration of Fe/Au nanoparticles with controllability of magnetic dipole interaction / Tomoyuki Ogawa, Hiroaki Kura, Migaku Takahashi // Scripta Materialia. -2011. - V. 64. - P. 1067-1070.

101. Sarmiento G. Magnetic and magnetotransport behavior of granular  $Fe_xAg_{100-x}$  thin films / G. Sarmiento, M. L. Fdez-Gubieda, I. Orue // J. Non-Crystal. Solid. – 2007. – V. 353. – P. 944–946.

102. Ferromagnetic resonance study of Fe50Ag50 granular film / G. Sarmiento,
M. L. Fdez-Gubieda, V. Siruguri [et al.] // J Magn. Magn. Mater. – 2007. – V. 316. –
e59–e62.

103. Magnetic properties of Fe-Ag granular alloys / L. F. Kiss, D. Kaptás, J. Balogh
[et al.] // J. Alloy. Compd. – 2009. – V. 483. – P. 620–622.

104. Tensoresistive effect in thin metal films in the range of elastic and plastic strain
/ I. P. Buryk, D. V. Velykodnyi, L. V. Odnodvorets [et al] // Techn. Phys. – 2011. –
V. 56. – P. 232–237.

105. Тищенко К. В. Особливості тензоефекту в плівках на основі ОЦК-Fe і a-Gd
/ К. В. Тищенко, Л. В. Однодворець, І. Ю. Проценко, Металлофиз. новейшие технол. – 2011. – Т. 33, №8. – С. 1351–1359.

106. Ефект тензочутливості у тонких металевих полікристалічних плівках / Л. В. Дехтярук, Є. О. Забіла, С. І. Проценко [та ін.] // Металлофиз. новейшие технол. – 2004. – Т. 26, № 10. – С. 1333–1345.

107. Characterization of sputtered nichrome (Ni-Cr 80/20 wt. %) films for strain gauge applications / I. H. Kazi, P. M. Wild, T. N. Moore [et al.] // Thin Solid Films. – 2006. – V.515,  $N_{2}$  4, – P. 2602–2606.

108. Структурно-фазовий стан, стабільність інтерфейсів та електрофізичні властивості двошарових плівкових систем / С. І. Проценко, І. В. Чешко, Д. В. Великодний [та ін.] // Успехи физ. мет. – 2007. – Т.8, №4. – С. 247–278.

109. Recovery of electrical resistance in copper films on polyethylene terephthalate subjected to a tensile strain / O. Glushko, V. M. Marx, C. Kirchlechner // Thin Solid Films. – 2014. – V. 552. – P. 141–145.

110. Запорожченко А. В. Тензорезистивні властивості гранульованих плівкових сплавів / А. В. Запорожченко, Ю. М. Шабельник, І. М. Пазуха // Матеріали науково-технічної конференції викладачів, співробітників, аспірантів та студентів факультету ЕлІТ [«ФЕЕ-2013»] (Суми, 22-27 квітня, 2013 р.). – Суми, 2013. – С. 94.

111. Однодворець Л. В. Електрофізичні та магніторезистивні властивості плівкових матеріалів в умовах фазоутворення / Л. В. Однодворець, С. І. Проценко, А. М. Чорноус, [за заг. ред. проф. І.Ю.Проценка]. – Суми: Вид-во СумДУ, 2011. – 203 с.

112. Проценко I. Ю. Прилади та методи дослідження плівкових матеріалів / І. Ю. Проценко, А.М. Чорноус, С. І. Проценко. – Суми: Вид-во СумДУ, 2008. – 264 c.

113. Проценко С. І. Феноменологічна модель електрофізичних властивостей гранульованих плівкових сплавів / С. І. Проценко, Л. В. Однодворець, І. В. Чешко // Вісник СумДУ. Серія «Фізика, математика, механіка». – 2008. – № 1. – С. 22–27.

114. Горелик С. С. Рентгенографический и электронно-оптический анализ / С. С. Горелик, Ю. А. Скаков, Л. Н. Расторгуев. [учеб. пособие для вузов. – 3-е изд. доп. и перераб.]. – М.: МИСИС, 1994. – 328 с.

115. JEOL 6610LV Scanning Electron Microscope – <u>http://www.seallabs.com/jeol-6610lv.html</u>

116. Великодный Д. В. Тензоэффект в двуслойных пленках Cu/Cr и Fe/Cr / Д. В. Великодный, С. И. Проценко, И. Е. Проценко // ФИП. – 2008. – Т. 6, № 1–2. – С. 37–42.

117. Магніторезистивні властивості спін-вентильних структур на основі Со та Cu або Au / M. Г. Демиденко, С. І. Проценко, Д. М. Костюк [та ін.] // Ж. наноелектрон. фіз. – 2011. – Т. 3, № 4. – С. 106–113.

118. Keithley 2000 digital multimeter. Manual -

http://circuitslab.case.edu/manuals/Keithley\_Model\_2000\_Multimeter\_Quick\_Refere nce\_Guide.pdf

119. Philips PM 2811. Manual -

http://www.k7jrl.com/pub/manuals/philips/pm2811/PM2811-progcard.pdf

120. Preparation and giant magnetoresistance of electrodeposited Co-Ag/Ag multilayers / J. García-Torres, L. Péter, Á. Révész [et al.] // Thin Solid Films. – 2009.
- V. 517. – P. 6081–6090.

121. Tumanski S. Thin film magnetoresistive sensors – London: Institute of PhysicsPublishing, 2001. – 441 p.

122. Чеботкевич Л.А. Структура и магнитные свойства отожженных пленок Со/Си/Со / Л.А. Чеботкевич, Ю.Д. Воробьев, И.Н. Буркова, А.В. Корнилов // ФММ. – 2000. – Т. 89, № 3. – С. 56–61.

123. Магніторезистивні властивостінанорозмірних плівкових системах на основі Fe i Pd / O. П. Ткач, Л. В. Однодворець, S. Nepijko [та ін.] // ФИП. – 2009. – Т. 7, № 3. – 256–261.

124. Protsenko I. Solid solution formation in Cu/Co ultrathin film systems /
I. Protsenko, I. Cheshko, Ja. Javorsky // Functional Mater. – 2006. – V. 13, №2. –
P. 219–222.

125. Co layer fragmentation effect on magnetoresistive and structural properties of nanogranular Co/Cu multilayers / F. Spizzo, C. Ferrero, A. Mazuelas [et al.] // J. Appl. Phys. – 2009. – V. 105. – P. 123533-1–123533-10.

126. Chandra Vimlesh. Magneto-resistance above 300 K in nano-crystalline Co-Ag metastable solid solutions / Vimlesh Chandra, Rishi Srivastava, S. Sundar Manoharan // J. Magn. Magn. Mater. – 2008. – V. 320. – P. 2397–2401.

127. Структурно-фазовий стан, електрофізичні та магнеторезистивні властивості твердих розчинів у плівкових системах на основі Со і Си або Ag та Fe i Cr або Cu /

Д. М. Кондрахова, Ю. М. Шабельник, О.В. Синашенко, І. Ю. Проценко // Успехи физ. метал. – 2012. – Т. 13. – С. 241–267.

128. Teruya Shinjo. Nanomagnetism and Spintronics [Secon ed.] / Teruya Shinjo. –
Elsevier Science & Technology, 2013. – 372 p.

129. Структура, дифузійні процеси та магніторезистивні властивості тришарових плівок Со/Аg/Со / В. Б. Лобода, Ю. О. Шкурдода, В. М. Шкурдода [та ін.] // ФХТТ. – 2011. – Т. 12, № 4. – С. 917–922.

130. Halahovets Y. Scanning magneto-optical Kerr microscope for studies of magnetic nanostructures: Autoref. Ph.D. Thesis / Y. Halahovets. – Comenius University in Bratislava. – Bratislava, 2009.– 19 p.

131. Growth of fcc Co in sputter-deposited Co/Au multilayers with (111) texture / T. Kehagias, Ph. Komninoun, C. Christides [et al.] // J. Crystal Growth. – 2000. – V. 208. – P.401–408.

132. Lang C. Macrostructure-comtrolled interdiffusion of Cu/Co/Au thin films investigation by thee-dimensional atom prpbe / C. Lang, G. Schmitz // Mater. Sci.

Eng. A. – 2003. – V. 353. – P. 119–125.

Шабельник Ю. М. Електрофізичні властивості гранульованих твердих розчинів у плівкових системах на основі Со і Ад / Ю. М. Шабельник, Л. В. Однодворець, І. Ю. Проценко // Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології. – 2012. – Т. 10, № 3. – С. 495–502.

134. Горбачева Т. Б. Рентгенография твердых сплавов / Т. Б. Горбачева. – М. : Металлургия, 1985. – 103 с.

135. Проценко С. Утворення твердих розчинів в плівкових гранульованих сплавах на основі Со і Ag або Au / C. Проценко, І. Чешко, Ю. Шабельник // Тези доповідей Міжнародкої конференції студентів і молодих науковців з теоретичної та експериментальної фізики [«Еврика-2011»], (Львів, 18-20 травня 2011 р.). – Львів, 2011. – С. СЗ6.

136. Yamamoto K. Microstructure and magnetoresistance in Cu-Co alloy thin films
/ K. Yamamoto, M. Kitada // Thin Solid Films. – 1995. – V.263. P.111–124.

137. Formation of metastabile phases and their effect on the magnetic properties of Co-Cu multilayers / G. H.Yang, K. W.Geng, F. Zeng [et al.] // Thin Solid Films. – 2005. – V.484. – P. 283–289.

138. Уивер К. Диффузия в металлических пленках / Физика тонких пленок. Том VI. / К. Уивер. – Москва : Мир, 1973. – С. 334–388.

139. Каур И. Диффузия по границам зерен и фаз. / И. Каур, В. Густ. – Москва : Машиностроение, 1991. – 448 с.

140. Фазовий склад, магніторезистивні та електрофізичні властивості плівкових систем на основі Со і Ад та Fe і Ge / O. B. Власенко, З. М. Макуха, Ю. М. Шабельник, Л. В. Однодворець, І. Ю. Проценко // Тези доповідей VI Міжнародної науково-практичної конференції [«Сучасні проблеми і досягнення в галузі радіотехніки, телекомунікацій та інформаційних технологій»], (Запоріжжя, 19-21 вересня 2012 р.). – Запоріжжя : ЗНТУ, 2012. – 323–324.

141. Тензорезистивні властивості тонкоплівкових систем на основі Ag i Co / I. М. Пазуха, З. М. Макуха, Ю. М. Шабельник, І. Ю. Проценко // Ж. нано-

електрон. фіз. – 2012. – Т. 4, № 3. – С. 03020-1 – 03020-4.

142. Электрофизические свойства пленочных гранулированных твердых растворов на основе Со и Ад или Аu / С. И. Проценко, И. В. Чешко, А. Н. Черноус, Ю. М. Шабельник // Тезисы докладов 3-й Международной конференции [«HighMatTech»], (Киев, 3-7 октября 2011 г). – Киев, 2011. – С. 257.

143. Концентраційна і температурна залежність ТКО у двокомпонентних плівкових системах на основі Fe i Cr Co i Ag та Fe i Cu / Ю. М. Шабельник, О. В. Синашенко, Л. В. Однодворець, І. Ю. Проценко // Матеріали X Міжнародної конференції [«Фізичні явища в твердих тілах»], (Харків, 6-9 грудня 2011 р.). – Харків, 2011. – С. 87.

144. Improved giant magnetoresistance in nanogranular Co/Ag: The role of interparticle RKKY interactions / J. A. De Toro, J. P. Andres, J. A. Gonzalez [et al.] // Phys. Rev. B. – 2004. – V.70. – P. 224412–224420.

145. Структура, дифузійні процеси і магніторезистивні та електрофізичні властивості плівкових матеріалів/ С. І. Проценко, І. В. Чешко, Л. В. Однодворець, І. М. Пазуха [За заг. ред. І. Ю. Проценка]. – Монографія. – Суми : Вид-во СумДУ, 2008. – 197 с.

146. Microstructure and electron transport properties of AuCo nano-alloys embedded in polyacrylonitrile thin films / H. Nabika, K. Akamatsu, M. Mizuhata [et al.] // J. Mater. Chem. – 2002. – V. 12. – P. 2408–2411.

147. Kitada M. Magnitoresistance and microstructure of sputtered Au-Co films /
M. Kitada // J. Magnet. Mag. Mater. – 2000. – V.208. – P. 244–250.

148. Скороход В.В., Уварова І.В., Рагуля А.В. Фізико-хімічна кінетика в наноструктурних системах. – Київ: Академперіодика, 2001. – 179 с.

149. Sang H. Study on GMR in Co-Ag thin granular films / H. Sang., Z.S. Jiang,
G. Guo. // J. Magn. Magn. Mater. – 1995. – V. 140-144. – P. 589-590.

150. Ефект тензочутливості у тонких металевих полікристалічних плівках / Л. В. Дехтярук, Є. О. Забіла, С. І. Проценко [та ін.] // Металлофиз. новейшие технол. – 2004. – Т. 26, № 10. – С. 1333–1345.
151. Correlation between the structural and transport properties of granular CoAg systems prepared by MBE / A.Aziz, S.M.Thompson, K.Ounadjela et al. // J. Magnet. Magn. Mat. – 1995. – V. 148. – P. 313–321.

152. Straine properties of granular film alloys / L. V. Odnodvorets, M. O. Shumakova, Yu. M. Shabelnyk, I. Yu. Protsenko, N. I. Shumakova // Materials of XIV International conference [«Physics and technology of thin films and nanosystems»], (Ivano-Frankivsk, May, 20-25, 2013) / Ivano-Frankivsk, 2013. – P. 274.

153. Strain properties of nanodimentional thin film systems based on Ag and Co / Z.
M. Makukha, Yu. M. Shabelnyk, I. M. Pazukha, C. J. Panchal, I. Yu. Protsenko //
Proc. Conf. [«Nanomaterials: Application and properties»], (Alushta, 17-22 September, 2012). – Sumy, 2012.– V. 1, № 2. – P. 02NFC12-1 – 02NFC12-3.

154. Peculiarities of the dependence of the strain coefficient on the deformation of metal films / K.V. Tyschenko, L.V. Odnodvorets, C.J. Panchal [et al.] //J. Nano-Electron. Phys. – 2012. – V.4, №4. – P. 04014-1–04014-4.

155. Магніторезистивні та магнітооптичні властивості плівкових систем із можливим спін-залежним розсіюванням електронів (огляд) / І.Ю. Проценко, І.В. Чешко, Л.В. Однодворець, Д. М. Кондрахова, О. В. Пилипенко, Ю. М. Шабельник, О. В. Власенко // Успехи физ. метал. – 2013. – Т. 14. – С. 229-255.

156. Magnetooptical and magnetoresistive properties of solid-solution films / I.V. Cheshko, D.M. Kondrakhova, L.V. Odnodvorets, O. V. Pylypenko, Yu. M. Shabelnyk // Universal J. Mater. Sci. -2013. - V.1, No 2. - P. 25-30.

157. Пазуха I. М. Особливості магніторезистивних властивостей гранульованих плівкових сплавів на основі Ag та Co / I. М. Пазуха, Ю. М. Шабельник, І. Ю. Проценко // ФХТТ. – 2012. – Т. 13, №4. – С. 907-915.

158. Magnetoresistive and magneto-optical properties of nanoscale thin film systems / D. M. Kondrakhova, I. Yu. Protsenko, L. V. Odnodvorets, Yu. M. Shabelnyk, O. V. Vlasenko // Book of abstracts of practice conference [«Nanotechnology and Nanomaterials»], (Bukovel, 25 August – 1 September 2013). – Bukovel, Ukraine, 2013. – P. 124.

159. Пазуха I. Магніторезистивні та магніто-оптичні властивості гранульованих плівкових сплавів на основі Au та Co / I. Пазуха, Ю. Шабельник // Тези доповідей Міжнародної конференції студентів і молодих науковців з теоретичної та експериментальної фізики [«Еврика-2013»], (Львів, 15-17 травня 2013 р.). – Львів, 2013. – С. С40.

160. У. Ф. Браун, Микромагнетизм – Москва: Наука, 1979. – 160 с.

161. Magnetoresistive and magnetooptical properties nanosize film systems based on Fe and Au / I. V. Cheshko, I. M. Pazukha, S. I. Protsenko, D. V. Shapko, M. Yu. Shabelnyk // Proc. Conf. [«Nanomaterials: Application and properties»], (Alushta, 16-23 September, 2013) / Sumy, 2013.– V. 2,  $N_{2}$  1. – P. 01NTF40-1 – 01NTF40-4.

162. Проценко І.Ю. Формування метастабільних твердих розчинів у плівкових системах на основі Со і Си, Ад та Аи / І.Ю. Проценко, І.В. Чешко // Металлофиз. новейшие технол. – 2009. – Т. 31, № 7. – С. 963–967.

163. Чешко І. В. Фізичні процеси в функціональних елементах на основі плівкових систем Co/Cu(Ag, Au) із спін-залежним розсіюванням електронів /
І. В. Чешко // Автореферат... канд. фіз.-мат. наук, спец.: 01.04.01 – фізика приладів, елементів і систем / І. В. Чешко. – Суми : СумДУ, 2009. – 22 с.

164. Шабельник Ю. М. Апробація феноменологічної моделі електрофізичних властивостей плівкових гранульованих сплавів / Ю. М. Шабельник // Матеріали науково-технічної конференції викладачів, співробітників, аспірантів та студентів факультету ЕлІТ [«ФЕЕ-2011»], (Суми, 18-22 квітня, 2011 р.). – Суми, 2011. – С. 95.

165. Phenomenological Theory of Strain Effect in Granular Film Alloys / L.V. Odnodvorets, M. O. Shumakova, I.Yu. Protsenko, Yu.M. Shabelnyk, N. I. Shumakova // Proc. Conf. [«Nanomaterials: Application and properties»], (Lviv, 21-27 September, 2014). – Sumy,– 2014. – V. 3, N 1. – P. 01NTF09-1–01NTF09-2.

166. Чешко І. В. Фізичні процеси в функціональних елементах на основі плівкових систем Co/Cu(Ag, Au) із спін-залежним розсіюванням електронів : дис. ... канд. фіз.-мат. наук : 01.04.07 / Чешко Ірина Володимирівна. – Суми,

2009. – 162 c.

167. Winkler E. M. A new model for electron movement in a thick film resistor and its application to analysis of the structure and conduction mechanism in these resistors / E. M. Winkler, G. K. Stenvoorden // Thin Solid Films. – 1987. – V. 152. – P. 487–497.

168. Структура та електропровідність ультратонких плівок міді, золота та срібла / А. П. Шпак, Р. І. Бігун, З. В. Стасюк [та ін.] // Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології. – 2010. – Т. 8, № 2. – С. 339–388.

169. Tyschenko K. V. Strain properties of nanodimentional film systems based on Fe and Pt / K. V. Tyschenko, I. M. Pazukha, N. I. Shumakova, Procc. NAP. – 2013. – V. 2, No 1. – 01NTF25-1–01NTF25-4.