

УДК 538.975

КП

№ держреєстрації 0115U000689

Інв. №

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

ЗАТВЕРДЖУЮ

Проректор з наукової роботи,  
д-р фіз.-мат. наук, професор  
\_\_\_\_\_ А.М.Чорноус

### **З В І Т**

**ПРО НАУКОВО - ДОСЛІДНУ РОБОТУ**

**ВПЛИВ ПРОЦЕСІВ ГРАНУЛІЗАЦІЇ І СПІН-ЗАЛЕЖНОГО  
РОЗСПІВАННЯ ЕЛЕКТРОНІВ НА ФІЗИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ  
ПЛІВКОВИХ ТВЕРДИХ РОЗЧИНІВ**

(остаточний)

Начальник НДЧ,  
канд. фіз.- мат. наук, старш. наук. співроб.

Д.І. Курбатов

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

І.Ю.Проценко

Суми – 2017

Рукопис закінчено 27 листопада 2017 року  
Результати роботи розглянуті науковою радою, протокол № 4 від 28 грудня 2017 р.

## СПИСОК АВТОРІВ

Керівник НДР, головний науковий співробітник, д-р фіз.- мат. наук, професор	20.12.2017р.	І.Ю. Проценко (розділ 4; підрозділи 5.1; 7.1; 7.2; 9.3, загальні висновки)
Провідний науковий співробітник, д-р фіз.- мат. наук, професор	20.12.2017р.	Л.В.Одноворець (підрозділ 3.3; 6.1; 7.3; 8.3, перелік умовних позначень)
Старший науковий співробітник, д-р фіз.- мат. наук, професор	20.12.2017р.	С.І. Проценко (підрозділ 3.1)
Старший науковий співробітник, канд.фіз.- мат. наук, доцент	20.12.2017р.	Н.І. Шумакова (підрозділ 3.2; 6.2; розділ 8 (вступ) перелік джерел посилання)
Старший науковий співробітник, канд.фіз.- мат. наук, доцент	20.12.2017р.	О.П. Ткач (підрозділ 1.2; 5.3; 8.2)
Молодший науковий співробітник	20.12.2017р.	О.В.Пилипенко (підрозділ 1.1)
Молодший науковий співробітник, канд.фіз.- мат. наук	20.12.2017р.	З.М. Макуха (підрозділ 1.3; 1.4)
Молодший науковий співробітник, канд.фіз.- мат. наук	20.12.2017р.	С.І. Воробйов (підрозділ 7.3)
Молодший науковий співробітник, завідувач лабораторіями	20.12.2017р.	О.С.Лободюк (підрозділ 2.1; 8.1)
Інженер, канд.фіз.- мат. наук	20.12.2017р.	М.Ю. Ромбовський (підрозділ 9.1)
Інженер, провідний фахівець	20.12.2017р.	А.О.Степаненко (підрозділ 9.2)
Лаборант, аспірант	20.12.2017р.	Д.В.Подуремне (підрозділи 2.2; 2.3)
Лаборант, аспірант	20.12.2017р.	Д.І. Салтиков (підрозділ 5.2)
Лаборант, студент	20.12.2017р.	К.С. Одноворець (підрозділ 5.2)
Лаборант, студент	20.12.2017р.	А.К. Рилова (підрозділ 8.1)

## РЕФЕРАТ

Звіт про НДР: 127 с., 3 ч., 16 табл., 66 рис., 118 джерел.

ГМО, ГРАНУЛЬОВАНИЙ СПЛАВ, ЕФЕКТ КЕРА, КОЕФІЦІЄНТ ТЕНЗОЧУТЛИВОСТІ, МАГНІТООПІР, ТВЕРДИЙ РОЗЧИН, ТЕРМІЧНИЙ КОЕФІЦІЄНТ ОПОРУ, ФАЗОУТВОРЕННЯ

Об'єкт досліджень – процеси фазоутворення, дифузійні процеси, електрофізичні та магніторезистивні властивості плівкових гранульованих твердих розчинів магнітної компоненти у немагнітній матриці.

Методи дослідження – вакуумна конденсація металів при одночасному або пошаровому їх осадженні, електронна мікроскопія, електронографія, енергодисперсійна спектроскопія, вторинно-іонна мас-спектрометрія, магніторезистивні вимірювання, магніто-оптичний ефект Кера.

Проведені дослідження фазоутворення в дво- та тришарових плівкових системах на основі благородних і магнітних металів, в яких при термовідпалюванні утворюється твердий розчин (т.р.) з елементами гранульованого стану. Установлено, що в системі на основі Со та Аg або Аu після термообробки формується обмежений твердий розчин атомів Со на основі ґратки Аg або Аu та відбувається виділення по всьому об'єму зразка гранул ГЦП-Со, середній розмір яких становить 5–10 нм; у системі на основі Fe та Аg або Аu спостерігається утворення також обмеженого т.р. Аg (Fe) або Аu (Fe) у зразках, відпалених вище температури  $T_g = 700$  К.

Дослідження дифузійних процесів методом ЕДС і ВІМС дозволили врахувати внески конденсаційно-стимульованої, іонно-стимульованої та термодифузії в ефективну величину коефіцієнта взаємної дифузії атомів, величина якого складає  $10^{-19} - 10^{-18}$  м/с<sup>2</sup>.

Вивчені концентраційні і розмірні ефекти в електрофізичних (ТКО і тензочутливість) властивостях. Дослідження магніторезистивних (МО, АМО і

ГМО) властивостей вказують на реалізацію недосконалого гранульованого стану, оскільки, в основному спостерігається ефект АМО. Вперше започатковані дослідження ефекту Кера в гранульованих зразках при їх деформації до 10%. Спостерігається збільшення кута Кера при поздовжній та його зменшення при поперечній деформації.

Отримані результати дозволяють запропонувати чутливі елементи для тензодатчиків із чутливістю у декілька десятків одиниць (гранульовані плівки на основі Fe та Au) та запропонувати матеріал із високою коерцитивністю (гранульовані плівки на основі фази  $L1_2$  ( $Fe_3Au$ )).

## ЗМІСТ

	С.
Скорочення та умовні позначки .....	8
Вступ .....	9
Частина 1. Фазоутворення в плівкових гранульованих сплавах .....	12
1 Фазовий склад плівкових матеріалів на основі Fe(Co) та Ag(Au) (літературний огляд).....	12
1.1 Гранульовані плівкові сплави на основі Fe або Co і Ag.....	12
1.2 Гранульовані плівкові сплави на основі Fe або Co і Au.....	17
1.3 Дифузійні процеси .....	20
2 Методика і техніка експерименту.....	23
2.1 Методика отримання плівкових зразків .....	23
2.2 Метод енерго-дисперсійного аналізу.....	24
2.3 Методика дослідження дифузійних процесів .....	28
2.4 Методика дослідження фазового складу .....	30
3 Структура і фазовий склад гранульованих і гетерогенного складу плівкових матеріалів.....	32
3.1 Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем на основі Co і Ag або Au .....	32
3.1.1 Багатошарові плівкові системи на основі Co і Ag.....	32
3.1.2 Багатошарові плівкові системи на основі Co і Au .....	38
3.2 Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем Fe і Ag або Au .....	40
3.3 Узагальнення результатів вивчення процесів фазоутворення у гранульованих плівкових сплавах .....	43
4 Дифузійні процеси в плівкових системах.....	46

4.1 Дослідження дифузійних процесів методом ЕДС - аналізу .....	46
4.2 Дослідження дифузійних процесів методом ВІМС .....	49
Частина 2. Електрофізичні властивості плівкових сплавів .....	53
5 Терморезистивні властивості гранульованих плівкових сплавів на основі феромагнітних (Fe, Co) та парамагнітних (Ag, Au) металів.....	53
5.1 Попередні зауваження.....	53
5.2 Методика і техніка експерименту.....	57
5.3 Електрофізичні властивості плівок на основі Fe і Ag або Au.....	63
5.4 Електрофізичні властивості плівок на основі Co і Ag або Au.....	69
6 Тензорезистивні властивості гранульованих плівкових сплавів на основі Fe або Co та Ag або Au.....	74
6.1 Тензоефект у плівкових системах на основі Fe і Ag або Au.....	74
6.2 Тензоефект у плівкових системах на основі Co і Ag або Au.....	79
7 Теоретичне узагальнення досліджень термо- і тензорезистивних властивостей гранульованих плівкових сплавів.....	82
7.1 Тензоефект в одношарових і тришарових плівкових системах із різним ступенем взаємної розчинності атомів.....	82
7.2 Особливості процесів розсіювання електронів у плівкових системах в умовах дії фізичних полів .....	88
7.3 Прикладні аспекти експериментальних досліджень .....	91
Частина 3. Магніторезистивні та магнітооптичні властивості плівкових гранульованих твердих розчинів на основі Co, Fe і Ag або Au ...	95
8 Магніторезистивні властивості мультишарів на основі Co або Fe та Ag або Au.....	95
8.1 Методика експериментальних досліджень.....	95
8.2 Магніторезистивні властивості багатшарових плівок на основі Co або Fe та Ag або Au .....	96
8.3 Магніторезистивні властивості гранульованих псевдосплавів на основі Co, Ag або Au .....	100

9 Магнітооптичні властивості плівкових гранульованих сплавів.....	104
9.1 Методика експериментальних досліджень.....	104
9.2 Вплив деформації на ефект Кера у плівкових матеріалах.....	107
9.3 Кореляція між структурно-фазовим станом і магніторезистивними властивостями плівкових матеріалів.....	109
Висновки .....	112
Перелік джерел посилання .....	116

## СКОРОЧЕННЯ ТА УМОВНІ ПОЗНАКИ

ЕДА, ВІМС – енерго-дисперсійний аналіз і вторинно-іонна мас-спектрометрія;  
 КСД, ІСД, ТД – конденсаційно-стимульована дифузія, іонно-стимульована дифузія, термодифузія;  
 МО, АМО, ГМО – магнітоопір, анізотропний магнітоопір, гігантський магнітоопір;  
 ОЦК, ГЦК, ГЦП – об’ємно-центрована кубічна, гранецентрована кубічна, гексагональна щільнопакована решітки;  
 т.р. – твердий розчин;  
 П, МП – підкладка, межа поділу шарів;  
 $d, L$  – товщина плівки і середній розмір кристаліта;  
 $d_{hkl}, a$  – міжплощинна відстань і параметр решітки;  
 $T_n, T_v$  – температура підкладки, відпалювання;  
 $D$  – ефективний коефіцієнт дифузії;  
 $D_0, Q$  – передіндексаційний множник; енергія активації дифузії;  
 $c$  – концентрація атомів;  
 $D_i, \mu_i$  – густина і молярна маса відповідного елемента;  
 $l, \tau_k$  – довжина і час дифузії при конденсації;  
 $l_v, \tau_v$  – довжина і час дифузії при відпалюванні;  
 $\rho; \beta, \text{ТКО}$  – питомий опір; термічний коефіцієнт опору;  
 $\gamma, \text{КТ}$  – коефіцієнт тензочутливості;  
 $n$  – лінійна концентрація фрагментів т.р. або гранул;  
 $\alpha, \Delta l_{mp}$  – ступінь гранулярності зразка, середня довжина фрагменту твердого розчину;  
 $\rho_g$  і  $\rho_{mp}$  – питомий опір матеріалу гранул і фрагментів т.р.;  
 $\beta_g$  і  $\beta_{mp}$  – ТКО матеріалу гранул і фрагментів т.р. відповідно.  
 $\lambda_0, \text{СДВП}$  – середня довжина вільного пробігу електронів;  
 $p$  і  $r$  – коефіцієнт дзеркальності і коефіцієнт проходження межі зерен;  
 $Q_{ij}$  – коефіцієнт проходження межі інтерфейсів;  
 $V_c$  – коерцитивна сила;  
 $\theta$  – кут Кера;  
 $\epsilon_{l,t}$  – повздовжня і поперечна деформація



## ВСТУП

Пошук плівкових матеріалів з покращеними властивостями обумовлений їх високою функціональністю, широким застосуванням при створенні терморезисторів, тензодатчиків, сенсорів магнітних характеристик та ін. [1] - [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 одержання матеріалів із стабільними електрофізичними або магніторезистивними властивостями. Такими системами можуть бути гранульовані сплави та т.р. на основі феромагнітних та благородних металів (це, насамперед, Co або Fe та Ag або Au) [11] – [13]. Згідно з діаграмами стану [14] (рис. 1.1) системи на основі Co та Ag або Au у звичайних умовах не перемішуються, лише при температурах вище 700 К відбувається часткова дифузія атомів даних металів з утворенням т. р. Також в системі на основі Co та Au при швидкому охолодженні з рідинної фази сплавів при характерних концентраціях Co 25–49 ат. % та 69–96 ат. % утворюється метастабільна фаза т.р.- (Au, Co). Системи на основі Fe та Ag або Au характеризуються повною незмішуваністю компонент [14].

Плівкові системи на основі Fe і Co та 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 і Co та режими термообробки, можна змінити фазовий склад системи на основі Fe і Co та Au або Ag від евтектичного стану до т.р. і, як наслідок, досягти зміни їх електрофізичних властивостей [15].

Стосовно тонкоплівкових матеріалів у вигляді гранульованих сплавів, в яких спостерігається ефект гігантського магнітоопору (ГМО), то вони знаходять широке застосування при виготовленні високочутливих перетворювальних елементів, на основі яких створюються накопичувачі інформації великої ємності, вимірювачі малих і великих електричних струмів, магнітометри, діагностичні

пристрої, що сприяє проведенню досліджень характеристик і властивостей таких плівок.

У гранульованих плівкових матеріалах феромагнітні гранули розміром порядку нанометрів вкраплені в немагнітну матрицю. ГМО в таких сплавах на основі феромагнітних і немагнітних металів, що містять однодоменні гранули у немагнітній матриці, було виявлено на початку 1990-х років [96], [97] і згодом знайшло пояснення в цілому ряді робіт в рамках механізму спін-залежного розсіювання електронів (СЗРЕ) на поверхні гранул (див., наприклад, [98] – [101]). У гранульованих плівках на основі Co та Cu, Ag або Au при різних концентраціях атомів немагнітної компоненти [98], [99] спостерігається ефект ГМО з амплітудою до 25 % завдяки СЗРЕ.

Технологія отримання ГМО-структур на основі гранульованих сплавів виявилася сумісною з процесами осадження контактів, що дало можливість використовувати її для виготовлення функціональних датчиків [100], [101]. Змінюючи матеріал, товщину і послідовність шарів, можна оптимізувати магнітні і електричні властивості таких наноструктур [102], [103] і розширити сфери їх практичного застосування. Ефект ГМО спостерігається і в інших системах із СЗРЕ: багат шарових нанодротах та спін-вентильних структурах на основі металевих плівок і ансамблів наночастинок оксидів металів. У роботі [104] на прикладі плівкового гранульованого сплаву  $(\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50})_x\text{Ag}_{1-x}$  при  $0,08 < x < 0,80$  товщиною  $d = 400$  нм (електронно-променеве співосадження компонентів) було отримано при  $x = 0,13$  значення ГМО = 35 % ( $T = 10$  К) та 17 % ( $T = 300$  К). У роботі [105] вивчалися властивості гранульованих керметних плівок  $(\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ . Було з'ясовано, що практично ізотропний тунельний МО (ефект, який, як і ГМО, пов'язаний із спін-залежним розсіюванням носіїв електричного струму) величиною до 10 % спостерігається при кімнатній температурі при концентраціях  $0,12 < x < 0,16$ . В огляді [106] проведено аналіз і узагальнення результатів досліджень ефекту ГМО в багат шарових матеріалах, розглянуті прикладні аспекти досліджень і перспективи розвитку ГМО-структур.

Вивчення кристалічної структури плівок на основі Ag і Co [107] товщиною 500-600 нм показало, що постійна решітки із збільшенням концентрації атомів Co зменшується практично лінійно. Величина МО, яка для цих плівок при кімнатній температурі має значення 22 %, після термообробки при  $T_b = 470$  К збільшується приблизно на 5 %, а після підвищення температури до  $T_b = 670$  К - суттєво зменшується. При  $c_{Co} = 38$  ат. % досягає максимального значення МО = 28 %.

У роботі [108] було встановлено, що, не дивлячись на те, що в мультишарах  $[Ag(2,6\text{нм})/Fe(0,2)]_{75}/Ag(2,6)$ ;  $[Ag(1,3)/Fe(0,2)]_{75}/Ag(1,3)$  і  $[Ag(0,8)/Fe(0,2)]_{75}/Ag(0,8)$  одночасно співіснують великі зерна і гранули магнітних компонент, розсіювання на гранулах відіграє домінуючу роль в сильних магнітних полях в широкому діапазоні температур і визначає максимальне значення ГМО = 5 % таких структур [108].

## ЧАСТИНА 1

### ФАЗОУТВОРЕННЯ В ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ СПЛАВАХ

#### 1 ФАЗОВИЙ СКЛАД ПЛІВКОВИХ МАТЕРІАЛІВ НА ОСНОВІ Fe(Co)

#### ТА Ag(Au) (літературний огляд)

##### 1.1 Гранульовані плівкові сплави на основі Fe(Co) і Ag

Автори роботи [16] вивчали кристалічну структуру сплаву  $Fe_xAu_{100-x}$ , 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 ґратки 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 сплавах, отриманих методом дугової плавки з 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 їх вплив на магніторезистивні властивості плівкових гранульованих сплавів на основі Fe та Ag або Au, отриманих різними методами осадження. Це такі відомі методи, як одночасна вакуумна конденсація, випарування масивних сплавів, електрохімічне осадження, високочастотна конденсація.

У роботі [17] було досліджено вплив концентрації окремих компонент гранульованої плівкової системи на основі Fe та Ag на магнітні властивості (насамперед, на магнітну взаємодію між собою наногранул Fe в немагнітній матриці срібла). Авторами [17] розглянуті дві системи з відносною концентрацією атомів заліза у системі на рівні 25 та 35 ат. %. Зразки досліджувалися в температурному інтервалі  $273 \leq T_e \leq 473$  К. Були встановлені наступні



методу показав наявність ГЦК-фази Ag (лінії (111), (200), (222) та (311)). Пік (110) від ОЦК-фази Fe не розділявся через накладання на нього більш інтенсивного піку Ag (200). Першому і другому піку відповідає параметр ґратки  $a = 0,4009$  та  $0,4003$  нм.

У роботі [18] автори спостерігали суперпарамагнітні кластери Fe в ГЦК решітці Ag, розміри яких були близькі 1,1 нм. Виходячи із рентгенівських даних автори розраховали параметр решітки ГЦК-Ag ( $a = 0,404$  нм), який відрізняється від аналогічної величини для масивного Ag ( $a_0 = 0,409$  нм). У роботі [19] вивчено вплив умов отримання плівкового сплаву магнетронним методом на магніторезистивні властивості. Так, залежно від тиску робочого газу ( $P = 0,1 \div 0,7$  Па) зменшувалося значення магнітоопору від 24 % до 2 % при  $P = 0,7$  Па. Автори роботи [20] спостерігали гранульовану плівкову структуру (гранули Fe у матриці Ag) при перемішуванні іонним пучком мультишарів  $[\text{Fe}/\text{Ag}/\text{П}]_n$  (П – підкладка,  $n$  – число фрагментів Fe/Ag).

Авторами роботи [21] було розглянуте питання впливу термообробки на стабільність характеристик т.р. та плівкових гранульованих сплавів на основі Fe та Ag. Зразки отримували магнетронним методом розпилення масивного матеріалу. Для підтвердження структурно-фазового складу в роботі використовувався XANES-метод (крайова спектроскопія високої роздільної здатності). Оптимальна концентрація Fe в системі для утворення т.р. – 38 ат. %. Структура до температури 673 К залишається стабільною, а після цієї температури відбувається часткове руйнування т. р. та утворення нових фаз. Автори [21] акцетують увагу на тому, що у плівкових системах на основі Fe і Ag правило Vegarda не виконується, оскільки параметр решітки ГЦК т.р. (Ag, Fe) в інтервалі концентрацій  $c = 20 - 40$  ат.% Fe майже не змінюється ( $a = 0,405 - 0,410$  нм), а відхилення від правила Vegarda при  $c = 40$  ат.% Fe має величину 0,015 нм.

Механізми утворення та властивості гранульованого стану т.р. на основі Co та Ag вже достатньо вивчені. Так, авторами робіт [22], [23] методами рентгенографії, електроннографії, електронної мікроскопії були проведені

експериментальні дослідження процесу формування гранульованих сплавів. У роботі [24] змодельований процес формування кластерів на основі атомів Co. Як видно з рис. 1.3, 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  $-0,19$  eВ.

В системах на основі Co та Ag або Au через обмежену взаємну розчинність, про що говорилося вище, відбувається гранулоутворення. Приклади мікрознімків з великою роздільною здатністю гранульованих сплавів на основі Co та Ag або Au представлені на рис. 1.4. У процитованих роботах [25], [26] була проведена кореляція між структурно-фазовим станом та магніторезистивними властивостями. На рис. 1.4 б зображена кластерна структура гранул. У багат шарових плівкових системах та сплавах на основі Co і Ag або Au через обмежену взаємну розчинність відбувається активне гранулоутворення. Відмітимо, що автори [26] спостерігали тонку структуру гранул, яка полягає в тому, що при розмірах  $D = 20-25$  нм вони складаються із 20-30 кластерів розміром 3 нм. Подібну, але не так чітко виражену, кластерну структуру гранул спостерігали також автори [27]. Аналіз мікрознімків вказує на те, що у відпалених зразках середня відстань між гранулами Co складає  $l = 10-30$  нм, а відношення  $D/l = 0,7-1$  або 1 для відпалених сплавів на основі Co і Ag [26]. У роботі [27] проводилось дослідження еволюції гранулярного стану в іонноосадженому сплаві Ag і Co з 22 % вмістом кобальту. Плівкові структури відпалювали в інтервалі температур 370 - 970 К. Мікроскопічні дослідження (рис.1.6) показали збільшення середнього розміру гранул Co від 2,3 до 30 нм. Але відмічається нерівномірність розподілу гранул по об'єму плівки. Так у плівках відпалених до 700 К спостерігались ділянки з середнім розміром гранул понад 50 нм і, навпаки, маються ділянки, де розмір гранул складає приблизно 1 нм. Поряд з гранулами Co виявлено наявність ділянок з разупорядкованою структурою в полікристалічній плівці в цілому на всьому інтервалі температур. Більш того, відмічається, що ці ділянки мають тенденцію збільшення середнього розміру до  $4-8$  нм (рис.1.5) при збільшенні температури відпалювання і утворюються біля кристалітів з розміром меншим за середній. Проведені

вимірювання ГМО на цих зразках показали, що найбільше його значення спостерігається після відпалювання до 500 К, а при збільшенні температури – різко зменшується до значень менших, ніж у невідпалених зразків. Таку різку зміну автори [27] пояснюють, поряд зі збільшенням середніх розмірів гранул, з погіршенням чіткості інтерфейсу між гранулами і матрицею, внаслідок переорієнтації Ag і утворенням квазіаморфних ділянок. У роботі [34] в отриманих

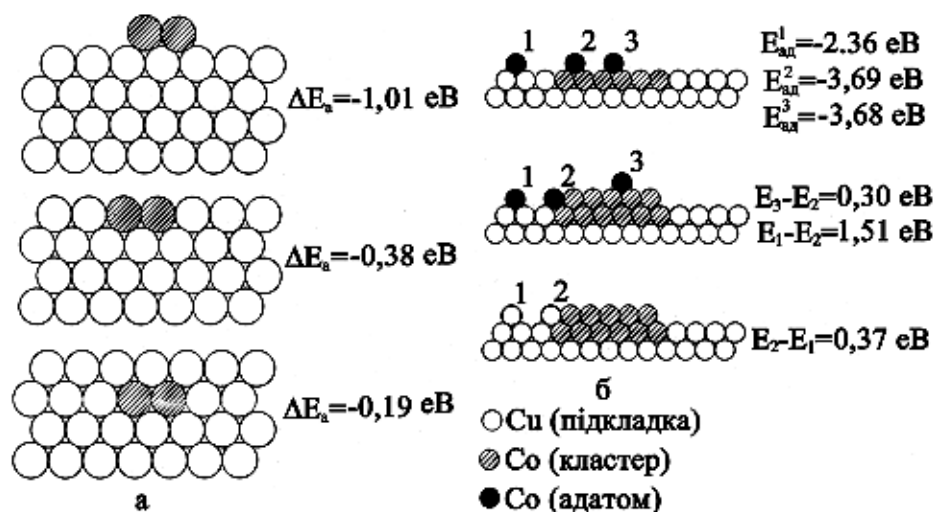


Рисунок 1.3 - Зміна енергії зв'язку двоатомного кластера Co із (001)Cu підкладкою залежно від його локалізації (а) та енергетика утворення поверхневого кластера Co (б). Із роботи [35]

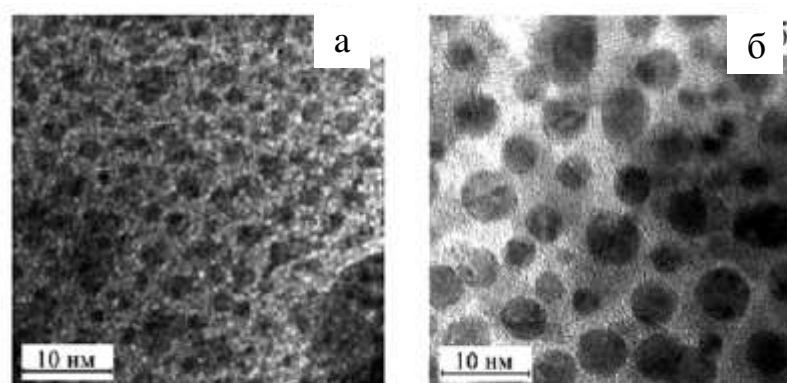


Рисунок 1.4 - Мікроструктура гранульованого сплаву на основі Ag і Co (а, б) [25] у невідпаленому (а) та відпаленому до 600 К (б) [36]



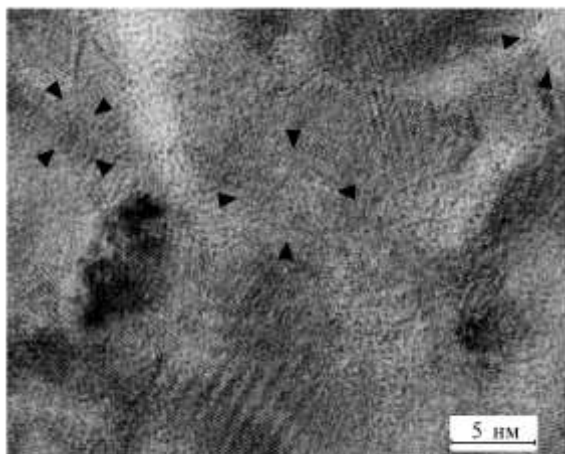


Рисунок 1.5 - Мікроструктура плівки на основі Ag та Co після відпалювання до 700 К. Реперними мітками указані ділянки з розупорядкованою структурою [27]

при кімнатній температурі лазерним випаровуванням одночасно з двох джерел плівках гранульованого сплаву на основі Ag та Co з вмістом до 10 ат. % Co середній розмір рівномірно розподілених фракційних включень Co складає менш ніж 10 нм, а середній розмір кристалітів Ag приблизно 25 нм. Після лазерної термообробки 10 імпульсами з піковою потужністю  $1 \cdot 10^{-5}$ ,  $1,5 \cdot 10^{-5}$  та  $2 \cdot 10^{-5}$  Дж/м<sup>2</sup> спостерігалось утворення конгломератів гранул Co розміром в декілька нм переважно біля границь кристалітів Ag, що в свою чергу збільшилися приблизно до 50 нм. В той же час, вимірювання магнітоопору цих плівок показало, що у невідпалених плівках спостерігається величина ГМО в 16 (при температурі 10 К), 12 (77 К) і 4 % (300 К), тоді як у термоброблених значення ГМО зменшується рівно в 4 рази при всіх температурах вимірювання. Це дає змогу дійти до висновку що нерівномірний перерозподіл магнітної компоненти призводить до зменшення долі спін-залежного розсіювання в загальну величину опору плівки.

## 1.2 Гранульовані плівкові сплави на основі Fe або Co і Au

З літературних даних [28] – [31] відомо, що в залежності від умов отримання плівкових зразків (тиск залишкових газів, методи осадження, час та швидкість конденсації) величина зерен та кристалів, частинок т.р. відрізняються на порядок. 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 спектрометрі [29], GIXRD-спектрометрі (спектрометр із 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 із розмірами кристалів сандвічів на основі Fe та Cu, де середній розмір зерна становить 10 нм. Також в роботі [34] спостерігалось про утворення метастабільного нанокристалічного сплаву на основі Ag і 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.

У мультишарах на основі Co/Cu(Au, Ag) в питанні структурно-фазового стану ключовим моментом завжди є визначення фазового стану шарів Co, і, якщо мова йде про шар Co у декілька моноатомних шарів, то про порядок розташування атомів в завжди стійкій ГЦК решітці немагнітних металів Cu, Au або Ag. Одношарові плівки Co мають ГЦК- і ГЦП-решітки і поліморфний ГЦП → ГЦК-перехід в масивних зразках відбувається при  $T=690$  К [37], а в малих частинках у результаті прояву фазового розмірного ефекту може відбутися при  $T \geq 600$  К [38]. Також в роботах [38], [39] повідомляється, що якщо частинки й острівці плівки більші за 10 нм, то в них присутні дефекти пакування (ДП), що можуть бути центрами зародження кристалітів ГЦК-фази. Але присутність іншого шару з ГЦК решіткою сильно впливає на стан шару Co. Так в роботі [40] встановили, що фазовий стан мультишарів  $[\text{Co}/\text{Au}(2,5 \text{ нм})]_{30}$  залежить від товщини шару Co. При  $d_{\text{Co}} < d_{\text{Au}}$  мультишар формується з ГЦК решітки з міжплощинною відстанню  $d=0,229$  нм в напрямку росту плівки. При  $d_{\text{Co}} \geq d_{\text{Au}}$  формується дві окремі ГЦК структури з відповідними внутрішніми релаксаціями.

Питання взаємної дифузії атомів в плівках Cu/Co/Au було розглянуто в роботі [41], де також досліджували взаємну дифузії атомів Au і Cu при умові, що шар Co застосовувався як бар'єрний. Автори констатували велику дифузійну активність атомів Au. Так без бар'єрного шару Co система Au/Cu мала зерномежеву

термодифузію (при температурі 520 К протягом 0,5 год) до 60 % загального об'єму атомів з обох напрямків. Шар Со виявився бар'єрним для атомів Си (продифундувавших атомів міді не більше 10 %), але в шарі Си атоми Аи склали 25÷50 % від загального об'єму. У роботі [42] досліджувалась взаємна дифузія атомів Аг в Со при температурах близьких до температури плавлення Аг (1000-1235 К). Як і в роботі [50] було отримано рівняння дифузії:  $D_{(Ag \rightarrow Co)} = 2,5 \cdot 10^{-10} \exp\left(-\frac{36541}{RT}\right)$  і розрахована довжина дифузійного пробігу  $l_g = 1,8-3$  нм. При збільшенні температури до 1380 К енергія активації збільшується майже в чотири рази.

Автори [24] приходять до висновку, що в умовах конденсації Со на поверхні Си також можливе утворення поверхневого сплаву. Ці висновки цілком узгоджуються з результатами роботи [24], у якій аналізувалися способи включення кластерів Со у моно- або полікристалічну плівку Со. Дані роботи [24] також узгоджуються із висновками [43], [44]. Згідно електронно-мікроскопічних досліджень [24] на поверхні зерен Си має місце змінний контраст, якій може бути обумовлений деформацією зерен Си через присутність в них дуже малих включень Со, які, в окремих випадках, можна безпосередньо спостерігати методом ПЕМ (розмір цих кластерів  $\sim 3$  нм). В той же час, при отриманні багат шарових плівок Со/Си високочастотним розпиленням з дуже малою товщиною окремих шарів формується псевдогранулярна мікроструктура, в яких має місце ефект ГМО.

У плівках на основі Аи і Со магнітні гранули Со мають дещо менші розміри (рис.1.6) у порівнянні із плівками на основі Аг і Со, в яких розміри гранул 3 – 6 нм, і сильно залежать від умов формування плівок.

У роботі [45] мова йде про наносплав Аи і Со у вигляді плівок товщиною 50 нм з різним процентним відношенням компонент. Так середній розмір гранул в сплавах навіть після відпалювання до температур 870 К не перевищує 4 нм.

Насамкінець відмітимо, що легка реалізація гранулярного стану фази Со, що має більші значення магнітної насиченості та магнітної анізотропії у порівнянні, наприклад, з Fe в низькоомних матрицях Си, Аи чи Аг, є причиною

великогорозповсюдження таких систем як матеріалів з ГМО. Але не виключено, що вирішальним для ГМО є саме можливість утворення гранульованих т.р.

У роботах [47], [48] детально вивчено вплив процесів росту і відпалювання на структуру і магнітні властивості мультишарів  $[\text{Co}/\text{Au}]_n/\text{П}$  з ультратонким шаром  $d_{\text{Co}} = 0,6$  нм [47] та з товщиною  $d_{\text{Co}} = 0,6; 0,9$  і  $1,2$  нм [48]. Установлено, що процес відпалювання дуже в значній мірі впливає на магнітні властивості. Аналогічні результати отримані у роботі [49] для випадку безструктурних плівкових систем на основі Co і Au, отриманих методом електроосадження. Детальні дослідження фазових перетворень в гранульованих

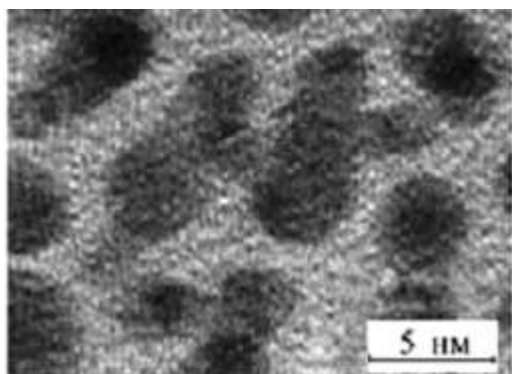


Рисунок 1.6 - Мікроструктура гранульованого сплаву на основі Co і Au у відпаленому до 800 К стані. Із роботи [46]

сплавах на основі Fe і Au при  $c = 20$  і  $30$  ат.% Fe проведені в роботі [50]. Із суттєвих результатів, отриманих в цій роботі, необхідно відмітити, що після відпалювання в сплаві утворювалась ГЦК-фаза, збагачена атомами заліза.

### 1.3 Дифузійні процеси

Якщо зробити проміжний висновок, то можна стверджувати, що фазовий склад плівкових систем на основі  $\text{Co}(\text{Fe})$  та  $\text{Ag}(\text{Au})$  до деякої міри вивчений, але дифузійні процеси в них залишаються не вивчені. Із невеликої кількості робіт з цієї тематики необхідно виокремити роботу [51], в якій автори методом CALPHAD (абр. від англ. CALculation of PHase Diagrams) здійснили розрахунок фазових діаграм і коефіцієнтів взаємної дифузії атомів Fe в Ag і Au та атомів Au в ГЦК Fe.

На рис. 1.7 представлена температурна залежність коефіцієнтів дифузії атомів Fe в Au. Відносно велика величина коефіцієнта дифузії пов'язана з тим, що розрахункові і експериментальні дані, які представлені на вказаних рисунках отримані для масивних зразків при температурах більше 1000 К. Як буде отримано нами (розділ 4), величина коефіцієнта дифузії у плівкових матеріалах на декілька порядків менша, ніж у масивних зразках, що пояснюється нами значно нижчими температурами вимірювання ( $T = 300\text{K}$ ) у нашому випадку. Результати роботи [52] (рис. 1.8) до деякої міри підтверджують висновок роботи [51] про ефективну дифузію атомів Fe в ГЦК решітку Au у плівковій системі на основі Fe і Au.

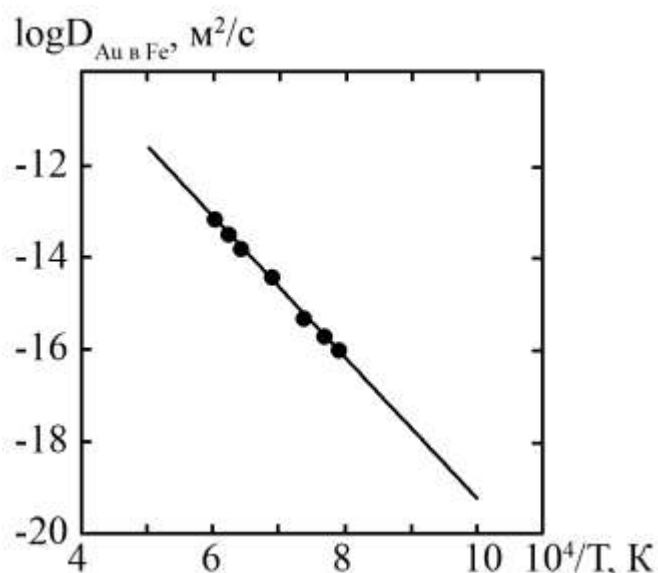


Рисунок 1.7 - Порівняння розрахункових і експериментальних величин коефіцієнтів дифузії атомів Au в Fe. Із роботи [51]

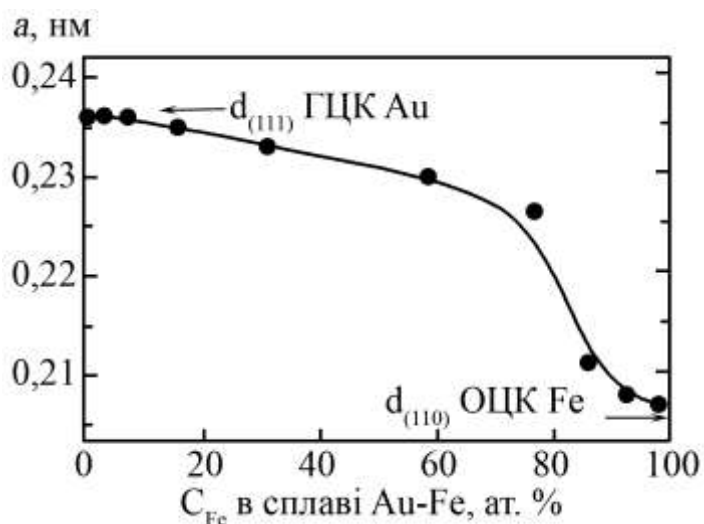


Рисунок 1.8 - Залежність параметра решітки т.р.(Au, Fe) від концентрації атомів Fe. Із роботи [52]

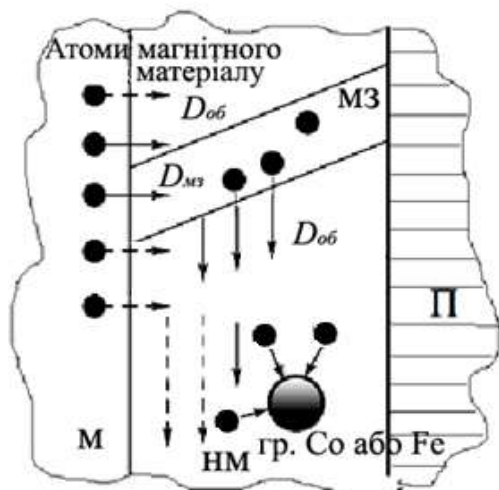


Рисунок 1.9 - Схема процесу формування твердого розчину та гранульованого сплаву у плівкових системах на основі Co або Fe та Ag або Au.  $D_{об}$ ,  $D_{мз}$  – коефіцієнти дифузії в об'ємі плівки і на межах зерен (МЗ); м – магнітний матеріал; гр. – гранула

Таким чином, аналіз літературних даних вказує на можливість формування плівкових гранульованих сплавів в системах на основі Co(Fe) та Ag(Au) із обмеженою розчинністю магнітної компоненти. Останній фактор як раз і сприяє формуванню гранульованого стану. Схематично цей процес можна представити у вигляді рис.1.9.

Обмеженість об'ємної дифузії атомів магнітної компоненти в матриці немагнітного металу обумовлює формування гранульованої системи із розміром гранул 1 – 10 нм. При таких розмірах гранул менші із них знаходяться в суперпарамагнітному стані і суттєво не впливають на електрофізичні і магніторезистивні властивості, а гранули більших розмірів спричиняють спін-залежне розсіювання електронів.

## 2 МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

### 2.1 Методика отримання плівкових зразків

Аналіз літературних даних 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. Найголовнішими вимогами – забезпечення мінімальної шорсткості підкладки, адже на неї конденсується нанорозмірна плівка та хімічної чистоти підкладок із вуглецю, які використовувалися наразі у процесі електроннографічних та електронно-мікроскопічних досліджень. Це питання було предметом спеціального вивчення нами спектральної чистоти плівок вуглецю [53], які використовувалися у процесі дослідження структурно-фазового стану металевих плівок. Проведені дослідження вказують на достатню чистоту С-плівок, гарантує відсутність взаємодії металевої плівки із атомами залишкової атмосфери.

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  $10^{-5}$  Па) та вакуумна установка ВУП-5М. Зовнішній вигляд цих установок зображений на рис. 2.1. Для осадження Ag та Au користувалися методом резистивного випарування з вольфрамового випарника типу «гусарик», а для конденсації тугоплавких металів використовували електронно-променеву гармату.

Швидкість осадження становила 1-5 нм/с, що дало можливість більш точно контролювати товщину зразків ( $d$ ), яка вимірювалася двома методами: методом кварцового резонатора в процесі конденсації та оптичної інтерферометрії.

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

## 2.2 Метод енерго-дисперсійного аналізу

Для розрахунку концентрації атомів окремих компонент плівкових систем використовувалось співвідношення:

$$c_i = \frac{D_i d_i \mu_i^{-1}}{\sum_{i=1}^n D_i d_i \mu_i^{-1}}, \quad (2.1)$$

де  $d_i$  – товщина шару плівки;

$D_i$  – густина металів;

$\mu_i$  – молярна маса.

Для підтвердження розрахункових значень використовувався метод енергодисперсійного (ЕДС) аналізу, який базується на аналізі рентгенівського спектру.

Дослідження елементного складу зразків проводилося на растрових електронних мікроскопах PEMMA-102 JEOL JSM-6610LV та JEOL JSM-6400, які обладнані відповідними приставками. PEMMA-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



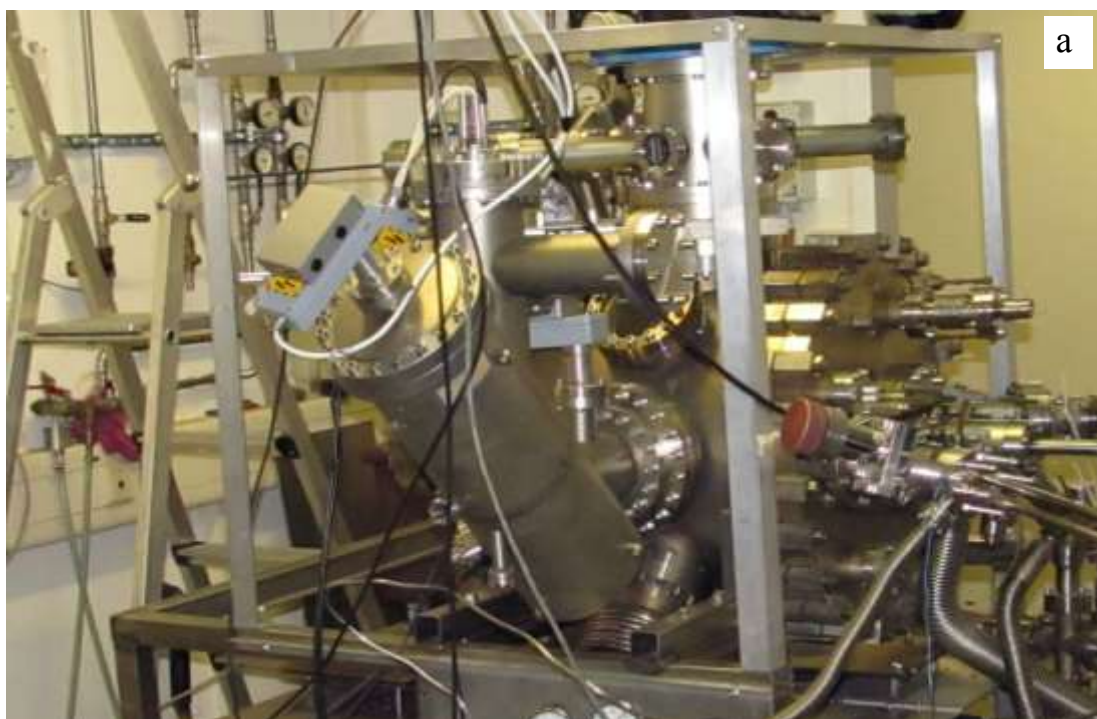


Рисунок 2.1 - Зовнішній вигляд надвисоковакуумної установки (а) та установки ВУП-5М (б)

100 с. На основі спектру 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.

На рис. 2.3 зображений приклад ЕДС спектру від плівкового зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, відпаленого до температури 800 К. Розрахунки, проведені за формулою (2.1), показали наступні результати:  $c_{\text{Fe}} = 53$  ат. %, що задовільно узгоджується з даними рис. 2.2 і табл. 2.1, які були отримані при дослідженні зразка на приладі JSM-6610LV.

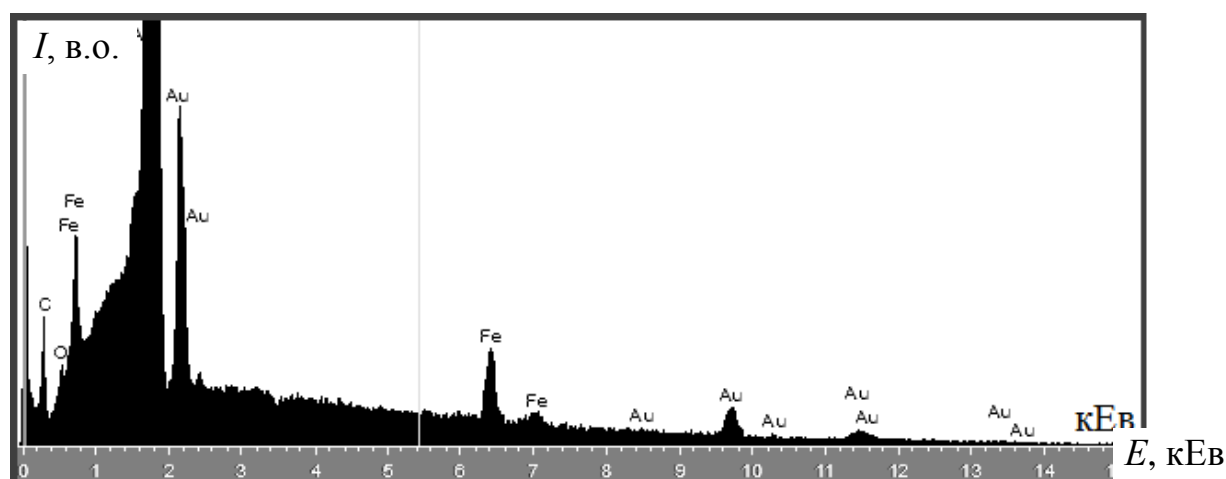


Рисунок 2.2 - Енергодисперсійний спектр від зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, термовідпаленого до 800 К, отриманий на приладі JSM-6610LV. Тут і далі в дужках вказана товщина в нм

Енергодисперсійні спектри також отримувалися на растровому мікроскопі JSM-6400, який знаходиться в Інституті фізики університету ім. Й. Гуттенберга у м. Майнц (Німеччина), за допомогою приставки WINEDS High Performance X-ray Microanalysis при вакуумі  $10^{-5}$  Па. Детектор рентгенівського випромінювання

охолоджувався рідким азотом та контролювався за допомогою DX3000 Detector Power Supply. На основі отриманих спектрів були визначені концентрації елементів з урахуванням  $k$ -факторів (коефіцієнтів Кліффа-Лорімера). Крім того, для деяких зразків виконувалася процедура «картографування», тобто візуалізація положення атомів певного типу. На рис.2.3. представлений зовнішній вигляд растрового мікроскопа. На рис.2.4. наведений приклад спектру енергодисперсійного рентгенівського аналізу, що був знятий для плівки Au/Co(30 нм)/Fe(30 нм)/MgO(100). Для всіх елементів фіксувались лінії  $K(\alpha)$ ,  $K(\beta)$ ,  $L(\alpha)$  та  $L(\beta)$ .

Фактори Кліффа-Лорімера враховують чутливість детектора до елементів у залежності від їх атомного номеру. Для отримання більш точних результатів значення концентрацій матеріалів визначаються з урахуванням цих  $k$ -факторів.

Для цього розв'язується система з наступних рівнянь:

$$C_A + C_B + C_C = 100\%,$$

$$C_B / C_C = k_{BC} (I_B / I_C),$$

$$k_{AB} = k_{AC} / k_{BC},$$

де  $C_i$  – концентрація певного елементу;

$I_i$  – інтенсивність рентгенівського випромінювання для певного елементу;

$k_{ij}$  – фактор Кліффа-Лорімера.

Таблиця 2.1 - Розшифровка ЕДС спектру від плівкового зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, термовідпаленого до 800 К

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

Похибка визначення концентрацій компонент на основі спектрів EDAX складає  $\cong 5\%$ . Значення концентрацій компонент, що були отримані експериментально, порівнювалися з розрахунковими даними (табл. 2.2). З таблиці видно, що значення цих концентрацій співпадають у межах похибки експерименту.

### 2.3 Методика дослідження дифузійних процесів

Особливості дифузійних процесів у двокомпонентних і гетерогенного складу плівкових матеріалах були досліджені методом вторинно-іонної мас-спектрометрії (ВІМС) на приладі MS-7201M. На основі мас-спектрів, отриманих на різних стадіях травлення плівкових зразків пучком первинних іонів  $Ar^+$ , були побудовані дифузійні профілі, за якими визначались коефіцієнти дифузії. Слід відмітити, що точне визначення коефіцієнтів дифузії на основі експериментальних результатів, є досить складною задачею з точки зору визначення коефіцієнтів об'ємної, зерномежевої або поверхневої дифузії окремо. Тому використовують означення «ефективний» коефіцієнт взаємної дифузії ( $D$ ), який розраховувався на основі співвідношення Уіппла:

$$c \cdot c_0^{-1} = \operatorname{erfc} [z \cdot (4 \cdot D \cdot \tau)^{-1/2}],$$

де  $c$  – середня концентрація глибині  $z$  (у нашому випадку це середнє значення сигналу вторинних іонів в об'ємі плівки);

$c_0$  – середня концентрація при  $z=0$  (у нашому випадку це середнє значення за 15 – 20 вимірами сигналу вторинних іонів із поверхні зразка);

$z$  – глибина проникнення атомів на домішки;

$D$  – ефективний коефіцієнт дифузії;

$\tau$  – час дифузії.

Таблиця 2.2 - Порівняння значень загальних концентрацій компонент у плівках

Система	Експериментальні дані			Розрахункові дані		
	$C_{Fe}$ ат.%	$C_{Co}$ ат.%	$C_{Au}$ ат.%	$C_{Fe}$ ат.%	$C_{Co}$ ат.%	$C_{Au}$ ат.%
Au(3)/Co(30)/Fe(30)/MgO	44,4	47,9	7,6	46,1	49,3	4,6



Рисунок 2.3 - Зовнішній вигляд скануючого мікроскопу JSM-6400

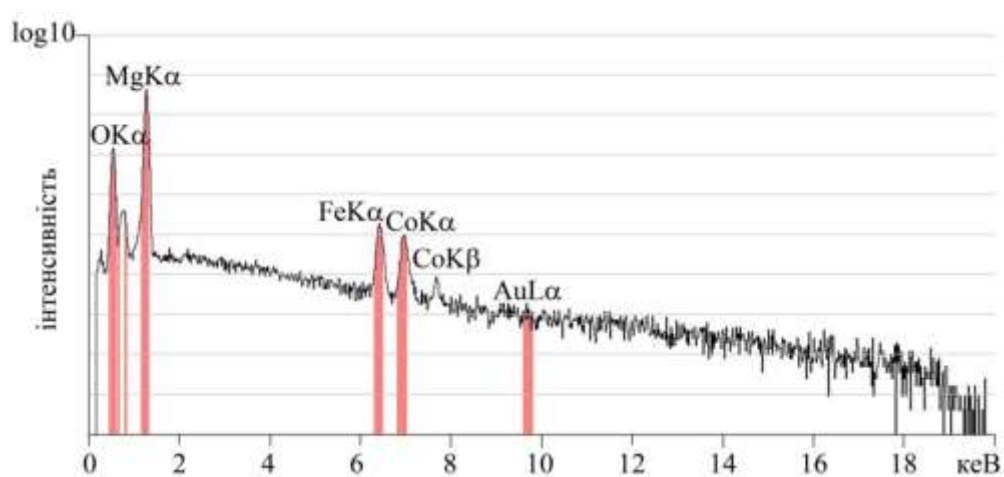


Рисунок 2.4 - Типовий вигляд енергодисперсійного спектру для системи Au/Co/Fe/MgO(100)

Метод ВІМС забезпечує високу чутливість за масами та дає пряму інформацію про елементний склад зразків, але основним недоліком методу залишається руйнування досліджуваного об'єкта внаслідок його витравлювання. Як приклад на рис.2.5 наведено дифузійні профілі, що побудовані на основі експериментальних даних ВІМС для системи Au(2 нм)/Co(30 нм)/Fe(30 нм)/MgO.

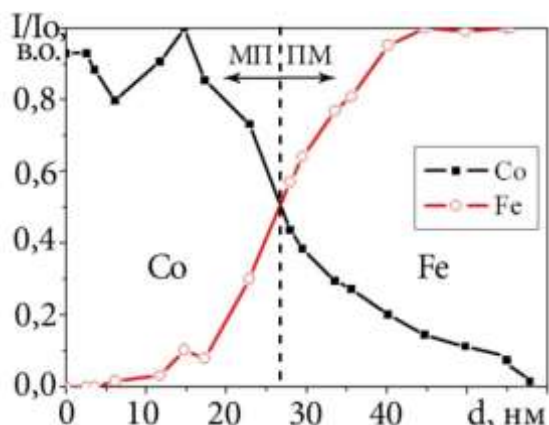


Рисунок 2.5 - Дифузійні профілі, що побудований на основі експериментальних даних ВІМС для системи Au(2 нм)/Co(30 нм)/Fe(30 нм)/MgO. МП – межа поділу, ПМ – площина Матано

#### 2.4 Методика дослідження фазового складу

Для дослідження кристалічної структури і фазового стану використовувалися електронний мікроскоп ПЕМ-125К високої роздільної здатності як в режимі електроннографії, так і електронної мікроскопії. Розшифровка електроннограм здійснювалася за стандартною методикою (див., наприклад, [54]). Приклад, електроннограми і її розшифрування наведені на рис. 2.6 і в табл. 2.3.

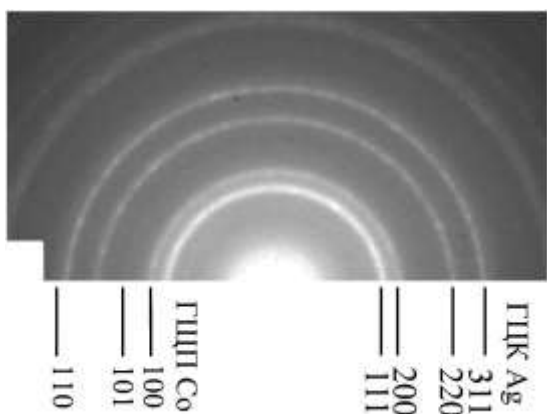


Рисунок 2.6 - Електроннограма від плівкової системи на основі Ag і Co Ag(10)/Co(5)/Ag(10)/Co(20)/П після конденсації. В дужках вказана товщина в нм

Таблиця 2.3 - Розшифрування електронограми від плівкової системи  
Ag(10)/Co(5)/Ag(10)/Co(20)/П після конденсації

№	$d_{hkl}$ , нм	$a$ , нм	$hkl$	фаза
1	0,236	0,408	111	ГЦК-Ag
2	0,217	0,250	100	ГЦП-Co
3	0,204	0,408	200	ГЦК-Ag
4	0,191	—	101c	ГЦП-Co
5	0,144	0,407	220	ГЦК-Ag
6	0,124	0,251	110	ГЦП-Co
7	0,123	0,408	311	ГЦК-Ag

Ag:  $\bar{a} = 0,408 \pm 0,001$  нм;  $a_0 = 0,409$  нм [54]  
ГЦП-Co:  $\bar{a} = 0,251 \pm 0,001$  нм;  $a_0 = 0,251$  нм [54]

Аналіз електронограми і табличних даних вказує на двофазний склад плівкової системи ГЦК-Ag+ ГЦП-Co з параметрами решітки добре відповідають аналогічним даним для масивних зразків. Метод мікроскопії дозволяє прослідкувати еволюцію кристалічної структури при термообробці як одношарових, так і дво- та багатошарових плівкових систем. У випадку взаємодії металевих зразків із атомами залишкової атмосфери мікроскопія дозволяє зафіксувати кристаліти домішкових фаз навіть у тому разі, коли ці фази не реєструються електронографічно (зауважимо відомий факт, що чутливість електронографії обмежується п'ятивідсотковим вмістом фази в досліджуваному зразку).

## 3 СТРУКТУРА І ФАЗОВИЙ СКЛАД ГРАНУЛЬОВАНИХ І ГЕТЕРОГЕННОГО СКЛАДУ ПЛІВКОВИХ МАТЕРІАЛІВ

### 3.1 Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем на основі Co і Ag або Au

#### 3.1.1 Багат шарові плівкові системи на основі Co і Ag

Нами були проведені дослідження процесів фазоутворення у сплавах  $(\text{Co}+\text{Ag})_n$  та дво-  $(\text{Co}/\text{Ag})$  і тришарових плівкових системах  $\text{Co}/\text{Ag}/\text{Co}$ , де Ag виступає прошарком між двома магнітними шарами, утворюючи так званий спейсер. Ця система може бути використана як чутливий елемент різного роду тонкоплівкових датчиків.

На рис. 3.1 представлені електронोगрами та відповідна мікроструктура від зразка  $\text{Ag}(34)/\text{Co}(15)/\text{П}$ , відпаленого до температури 800 К, а в таблиці 3.1 представлені розшифрування електронोगрами від зразка після термообробки до 800 К. Як у двошаровій, так і в тришаровій системі в щойносконденсованому стані можна виділити на електронोगрамах окремі лінії ГЦК-Ag та ГЦП-Co та лінії від дефектів пакування (ДП) (табл. 3.2). На рис. 3.2 представлені електронोगрами та відповідні мікроструктури від зразків  $[\text{Ag}(32) + \text{Co}(8)]/\text{П}$  (а) та  $[\text{Ag}(12) + \text{Co}(29)]/\text{П}$  (б) отриманих одночасною конденсацією у невідпаленому стані з ефективною концентрацією атомів Co 28 та 78 ат. % відповідно. Отримано, що вже у процесі осадження утворюється т.р. з виділенням гранул ГЦП-Co.

Термообробка плівкових систем  $\text{Ag}/\text{Co}$  та  $\text{Co}/\text{Ag}/\text{Co}$  до температур 700–900 К призводить до зміни кристалічної структури від цих зразків.

На рис. 3.3 представлена серія електронोगрам від невідпаленої при 300К та відпалених до 700, 800, 900 К і охолоджених до 300 К плівки  $\text{Co}(10)/\text{Ag}(20)\text{Co}(10)/\text{П}$ . На даній стадії термообробки у зразках утворюється т.р.-  $(\text{Ag}, \text{Co})$  та виділяються гранули ГЦП-Co. Як показали дослідження утворення фази т.р. з елементами гранульованого стану в системі можливе лише при певній



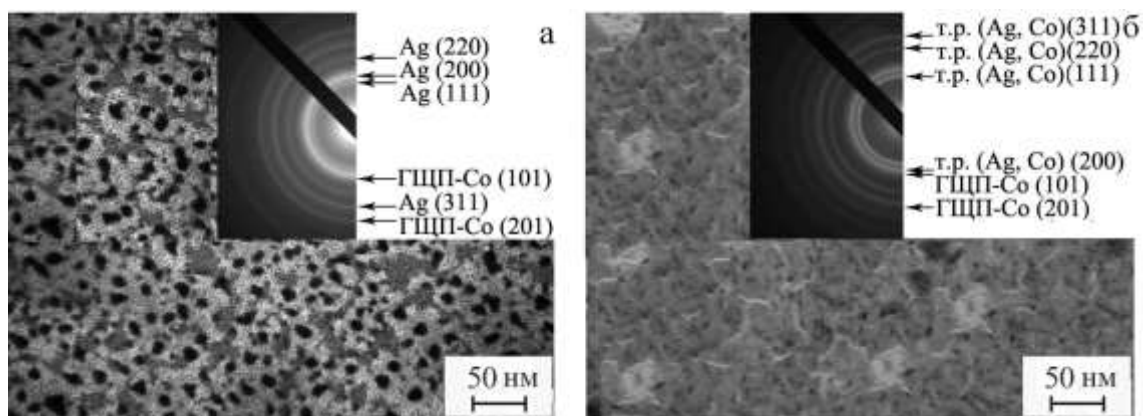


Рисунок 3.1 - Електронограма та відповідна мікроструктура плівкової системи Ag(34 нм)/Co(15нм)/П у невідпаленому (а) та після відпалювання до 800 К (б) стані. Загальна концентрація – 32 ат. % Co

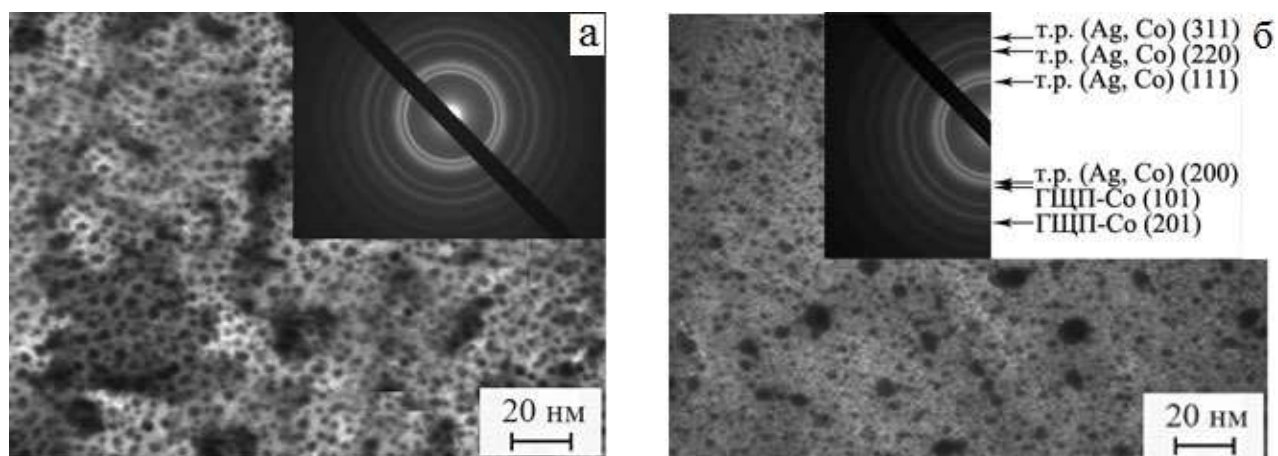


Рисунок 3.2 - Електронограма та відповідна мікроструктура плівкових систем [Ag(32) + Co(8)]/П (а) та [Ag(12) + Co(29)]/П (б) у невідпаленому стані. Загальна концентрація – 28 та 78 ат. % Co, відповідно

Таблиця 3.1 - Розшифрування електронограм від плівкової системи  
Ag(34)/Co(15)/П, відпалених до 300 і 800 К

№	$T_g = 300$ К					$T_g = 800$ К				
	I, в.о.	$d_{hkl}$ , нм	hkl	фаза	$a$ , нм	I, в.о.	$d_{hkl}$ , нм	hkl	фаза	$a$ , нм
1	ср.	0,236	111	Ag	0,407	Д С	0,236	111	т.р. (Ag, Co)	0,408
2	Д. С.	0,205	200	Ag	0,407	ср	0,205	200	т.р. (Ag, Co)	0,408
3	ср.	0,192	101	ГЦП-Co	–	ср	0,193	101	ГЦП-Co	–
4	ср.	0,145	220	Ag	0,407	ср	0,145	220	т.р. (Ag, Co)	0,407
5	сл.	0,124	311	Ag	0,406	сл	0,123	311	т.р. (Ag, Co)	0,408
6	Д. сл.	0,108	201	ГЦП-Co	–	Д сл	0,108	201	ГЦП-Co	–
Ag: $\bar{a} = 0,407 \pm 0,0003$ нм; Ag: $a_0 = 0,409$ нм [54]					т.р.-(Ag, Co): $\bar{a} = 0,408 \pm 0,0003$ нм					

Таблиця 3.2 - Розшифрування електронограм від невідпалених плівок  
[Ag(32)+Co(8)]/П та [Ag(12)+Co(29)]/П

№	(Ag(32)+Co(8))/П					(Ag(12)+Co(29))/П				
	I, в.о.	$d_{hkl}$ , нм	hkl	фаза	$a$ , нм	I, в.о.	$d_{hkl}$ , нм	hkl	фаза	$a$ , нм
1	Д. С.	0,237	111	т.р. (Ag, Co)	0,408	Д. С.	0,236	111	т.р.(Ag, Co)	0,408
2	ср.	0,205	200	т.р. (Ag, Co)	0,408	ср.	0,204	200	т.р.(Ag, Co)	0,408
3	ср.	0,182	101	ГЦП-Co	–	ср.	0,192	101	ГЦП-Co	–
4	ср.	0,145	220	т.р. (Ag, Co)	0,408	ср.	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	Д. сл.	0,109	201	ГЦП-Co	–	Д. сл.	0,118	201	ГЦП-Co	–
т.р.-(Ag, Co): $\bar{a} = 0,408 \pm 0,0003$ нм; Ag: $a_0 = 0,409$ нм [54]					т.р.-(Ag, Co): $\bar{a} = 0,408$ нм					

концентрації двох компонент. При відносно малій концентрації атомів Co відбувається утворення т.р.-(Ag, Co) та виділяються гранули Co. При дуже малій концентрації атомів Co зразки мають однорідну крупнозернисту полікристалічну структуру, що відповідає шару Ag. При відпалюванні до 700 K у плівкових системах на основі Co і Ag з приблизно однаковим вмістом атомів обох сортів утворюються т.р. на основі ГЦК ґратки, в об'ємі кристалів яких формуються наногранули Co, розмір яких має величину до  $8 \div 12$  нм (рис. 3.3 г).

При утворенні т.р.-(Ag, Co) має місце незначне зменшення параметра ґратки (до 0,407 нм), що дещо менше у порівнянні з параметром ґратки  $\bar{a}$  (Ag) = 0,408 нм у невідпаленій плівці. Таким чином, у результаті відпалювання дво- та багатошарових плівок на основі Ag і Co виникає можливість стабілізації т.р.-(Ag, Co) з утворенням елементів 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 (табл. 3.3).

Для цього використовувалися дві установки: РЕММА-102 та JEOL JSM-6610LV, які обладнані відповідними приставками. На спектрах (рис. 3.5) добре видно піки від Co та Ag. Але, оскільки, метод EDX-аналізу дозволяє пройти через зразок, то ми можемо спостерігати і піки від матеріалу, з якого складається підкладка – в даному випадку це Ca, Ti, Mg, Si та Al. На рис. 3.5 зображений спектр від зразка Ag(34)/Co(15)/П, який був відпалений до  $T_e = 800$  K.

Як можна бачити з розшифровки даного спектру концентраційний вміст Co 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 82,92 ат. % (середнє значення концентрацій). На спектрі від термовідпаленого до 800 K зразка Ag(34)/Co(15)/П спостерігаються і чужорідні піки від Ca, Mg та Al, що належать матеріалу підкладки. Тому атомна концентрація Co розраховується від загального вмісту, що включає в себе і атоми матеріалу підкладки, що і призводить до невідповідності експериментальних і розрахункових даних.

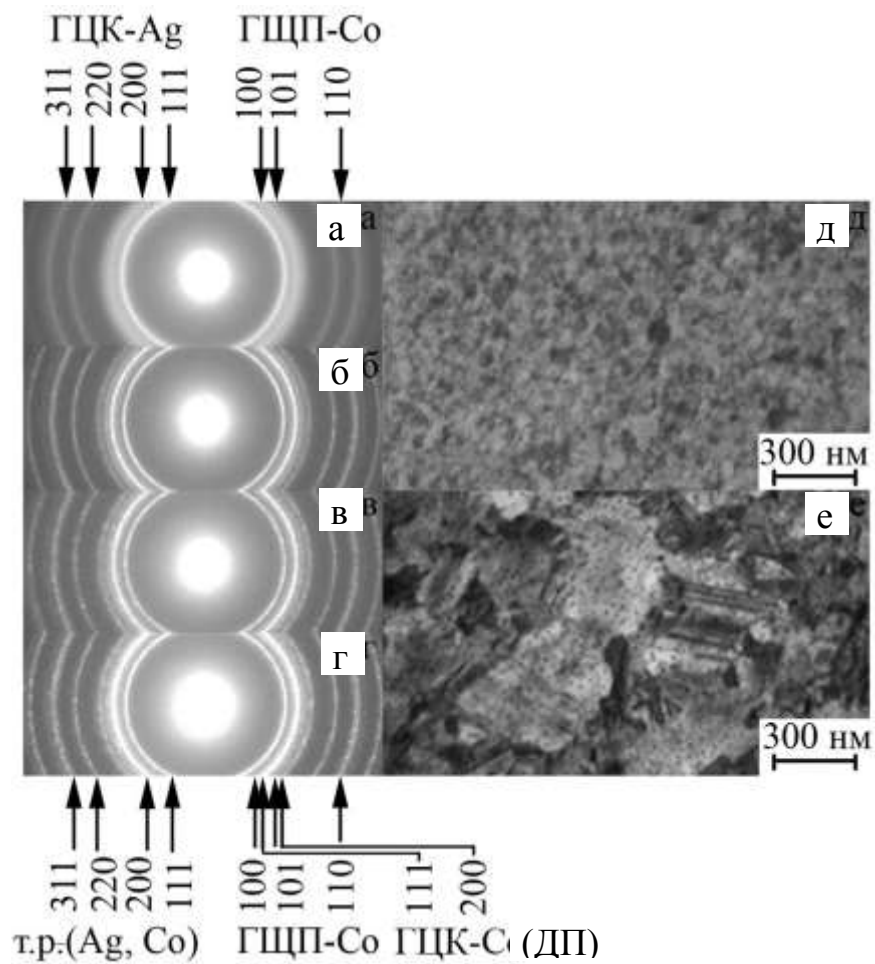


Рисунок 3.3 - Электронограмми (а-г) та гранульована кристалічна структура (д, е) плівкової системи Co(10)/Ag(20)Co(10)/П після конденсації (а, д) та після відпалювання до  $T_e = 700$  (б), 800 (в), 900 К (г, е)

Таблиця 3.3 - Фазовий склад тришарової плівки Co(10)/Ag(20)Co(10)/П після конденсації та термообробки при  $T_g = 700$  та  $900$  К

№	Без термообробки					$T_g, K$					hkl	Фаза
						700			900			
	$I, \text{в.о.}$	$d_{\text{hkl}}, \text{нм}$	hkl	фаза	$a, \text{нм}$	$I, \text{в.о.}$	$d_{\text{hkl}}, \text{нм}$	$a, \text{нм}$	$d_{\text{hkl}}, \text{нм}$	$a, \text{нм}$		
1	Д. С.	0,236	111	ГЦК-Ag	0,408	Д С	0,235	0,408	0,236	0,408	111	т.р.-(Ag, Co)
2	ср.	0,217	100	ГЦП-Co	0,250	ср.	0,215	0,251	0,216	0,251	100	ГЦП-Co
3	ср.	0,204	200	ГЦК-Ag	0,408	ср.	0,203	0,406	0,203	0,406	200	т.р.-(Ag, Co)
								0,351		0,351	111	ГЦК-Co (ДП)
4	ср.	0,191	101	ГЦП-Co	–	ср.	0,192	–	0,191	–	101	ГЦП-Co
5	сл.	–	–	–	–	сл.	0,176	0,352	0,176	0,352	200	ГЦК-Co (ДП)
6	Д. сл.	0,144	220	ГЦК-Ag	0,407	Д. сл.	0,144	0,407	0,144	0,407	220	т.р.-(Ag, Co)
7	Д. сл.	0,124	110	ГЦП-Co	0,251	Д. сл.	0,123	0,356	0,123	0,356	110	ГЦП-Co
8	Д. сл.	0,123	311	ГЦК-Ag	0,408	Д. сл.	0,122	0,405	0,122	0,405	311	т.р.-(Ag, Co)
ГЦК-Ag: $\bar{a} = 0,408 \pm 0,0003$ нм; ГЦП-Co: $\bar{a} = 0,250 \pm 0,0005$ нм						т.р.-(Ag, Co): $\bar{a} = 0,407 \pm 0,001$ нм; ГЦП-Co: $\bar{a} = 0,251$ нм; ГЦК-Co: $\bar{a} = 0,353 \pm 0,002$ нм			т.р.-(Ag, Co): $\bar{a} = 0,407 \pm 0,001$ нм; ГЦП-Co: $\bar{a} = 0,251$ нм ГЦК-Co: $\bar{a} = 0,352 \pm 0,002$ нм			
ГЦК-Ag: $a_0 = 0,409$ нм; ГЦП-Co: $a_0 = 0,250$ нм; ГЦК-Co: $a_0 = 0,355$ нм [54]												

### 3.1.2 Багат шарові плівкові системи на основі Co і Au

На рис. 3.4 представлені мікроструктура та відповідні електроннограми (розшифрування в табл.3.4) від невідпалених та відпалених до температури 800 К плівок на основі атомів Co і Au, які у масивних зразках характеризується майже повною незмішуваністю. Фазовий склад невідпалених зразків двофазний – ГЦК-Au+ГЦП-Co+ГЦК-ДП (ДП-дефекти пакування в ГЦП фазі, на яких формується дифракційна картина, яка відповідає ГЦК решітці). Параметр кристалічної ґратки 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. Кристаліти плівкового зразка мають нанорозміри:  $L = 20-30$  нм (плівка Au) та  $L = 5-10$  нм (плівка Co). Електроннографічні дослідження термооброблених до температури  $700 \div 900$  К плівкових зразків Au/Co/П свідчать про утворення твердих розчинів, елементи гранульованого стану в яких можливі при концентрації  $c = 40-60$  ат.% Co (розмір гранул становить 5 – 10 нм).

Проведені електроннографічні 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, можна припустити, що утворення даної фази відбувається на межі поділу шарів. Оскільки, основним механізмом дифузії у полікристалічних зразках вважається дифузія по межах зерен [55], 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 ГЦП-Co, а надлишок атомів може знаходитися на межах зерен або локалізуватися у залишковому шарі Co (рис.1.11). Термообробка зразків, отриманих пошаровою конденсацією компонент, також дає змогу формувати стабільні т.р. з елементами гранульованого стану на основі Au та Co.

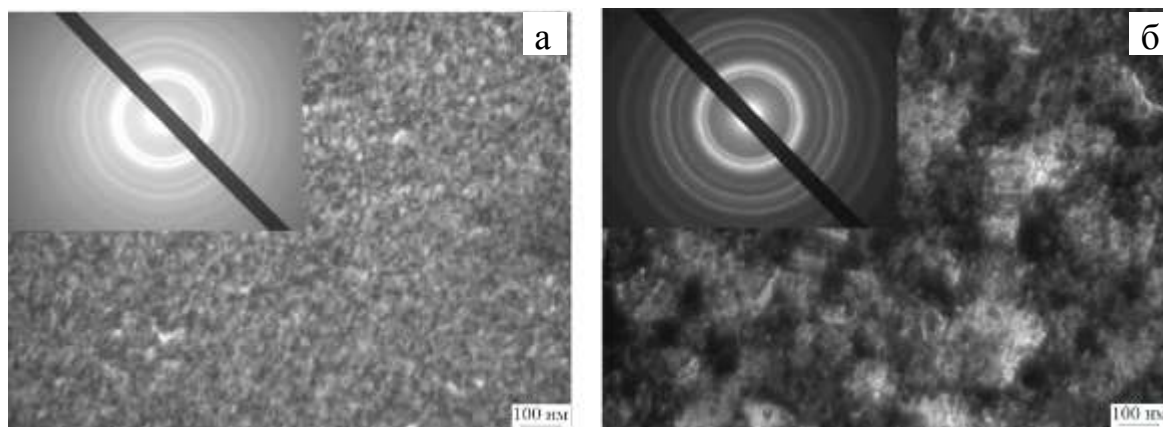


Рисунок 3.4 - Електронограми та мікроструктура плівки Au(20)/Co(29)/П у невідпаленому (а) та після відпалювання до  $T_g = 800$  К (б) станах. Загальна концентрація – 68 ат. % Со

Таблиця 3.4 - Розшифрування електронограм від плівки Au(20)/Co(29)/П

№	$T_g = 300$ К					$T_g = 800$ К				
	$I, \text{в.о.}$	$d_{hkl}, \text{нм}$	$hkl$	фаза	$a, \text{нм}$	$I, \text{в.о.}$	$d_{hkl}, \text{нм}$	$hkl$	фаза	$a, \text{нм}$
1	ср.	0,235	111	ГЦК-Au	0,407	Д.С.	0,232	111	т.р.- (Au, Co)	0,406
2	Д.С.	0,204	200	ГЦК-Au	0,408	ср.	0,203	200	т.р.- (Au, Co)	0,406
3	ср.	0,202	101	ГЦП-Co	–	ср.	0,147	101	ГЦП-Co	–
4	ср.	0,144	220	ГЦК-Au	0,408	ср.	0,144	220	т.р.- (Au, Co)	0,407
5	сл.	0,123	311	ГЦК-Au	0,408	сл.	0,123	311	т.р.- (Au, Co)	0,408
6	Д.сл.	0,108	222	ГЦП-Co	–	Д.сл.	0,108	201	ГЦП-Co	–
Au: $\bar{a} = 0,408 \pm 0,0003$ нм					т.р.-(Au, Co): $\bar{a} = 0,407 \pm 0,0005$ нм					

Термообробка плівкових систем на основі Au та Co до температур 700÷900 К до суттєвих змін у фазовому стані не приводить. Також при термовідпаленні до вище зазначених температур на мікроструктурах від зразків не спостерігається значного росту кристалітів т.р. Можливо частковий розпад т.р.-(Au, Co) та збільшення розміру гранул відбувається при температурах більших, ніж 900 К.

### 3.2 Фазоутворення та особливості кристалічної структури плівкових систем на основі Fe і Ag або Au

Про характер фазоутворення в плівковій системі на основі Fe і Au можна судити, виходячи із даних рис.3.5 і табл.3.5. На електроннограмах від невідпаленого зразка фіксуються дифракційні лінії, що належать як Au, так і ОЦК-Fe. Кристаліти у двокомпонентній плівці мають середній розмір  $L = 10$  нм.

Аналіз електроннографічних і мікроскопічних даних для плівкової системи Fe/Au)/Fe/П вказує на те, що у вихідному стані ця система має двофазний склад, тобто представляє собою евтектику. 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 ґратки т. р. становить  $a_{т.р.} = 0,407$  нм, що відповідає літературним даним. Подальша термообробка до температури 800 та 900 К призводить до утворення в системі оксиду заліза Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (на електроннограмах фіксуються два кільця – (200) та (311) з  $d_{hkl} = 0,296$  нм і 0,252 нм відповідно) із параметром  $a = 0,838$  нм кристалічної ґратки типу шпінелі. Лінія (200) з  $d_{hkl} = 0,204$  нм, що належить ГЦК-фазі Au має більшу інтенсивність в порівнянні з (110) ОЦК-Fe і, таким чином, на електроннограмі можна спостерігати подвійну лінію як одну. Після термовідпалювання до  $T_e = 700$  К починається утворення т.р.-(Au, Fe) з параметром ґратки  $\bar{a}_{т.р.(Au, Fe)} = 0,406$  нм, при цьому на електроннограмах також спостерігаються лінії від ОЦК-Fe із параметром ґратки  $\bar{a}_{Fe} = 0,287$  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 плівках на основі Fe та Ag як і у випадку ОЦК-Fe і Au у невідпаленому стані спостерігається індивідуальність шарів з параметром кристалічної ґратки  $\bar{a} = 0,287$  нм для ОЦК-Fe та  $\bar{a} = 0,407$  нм та ГЦК-Ag. На електроннограмах від даних структур



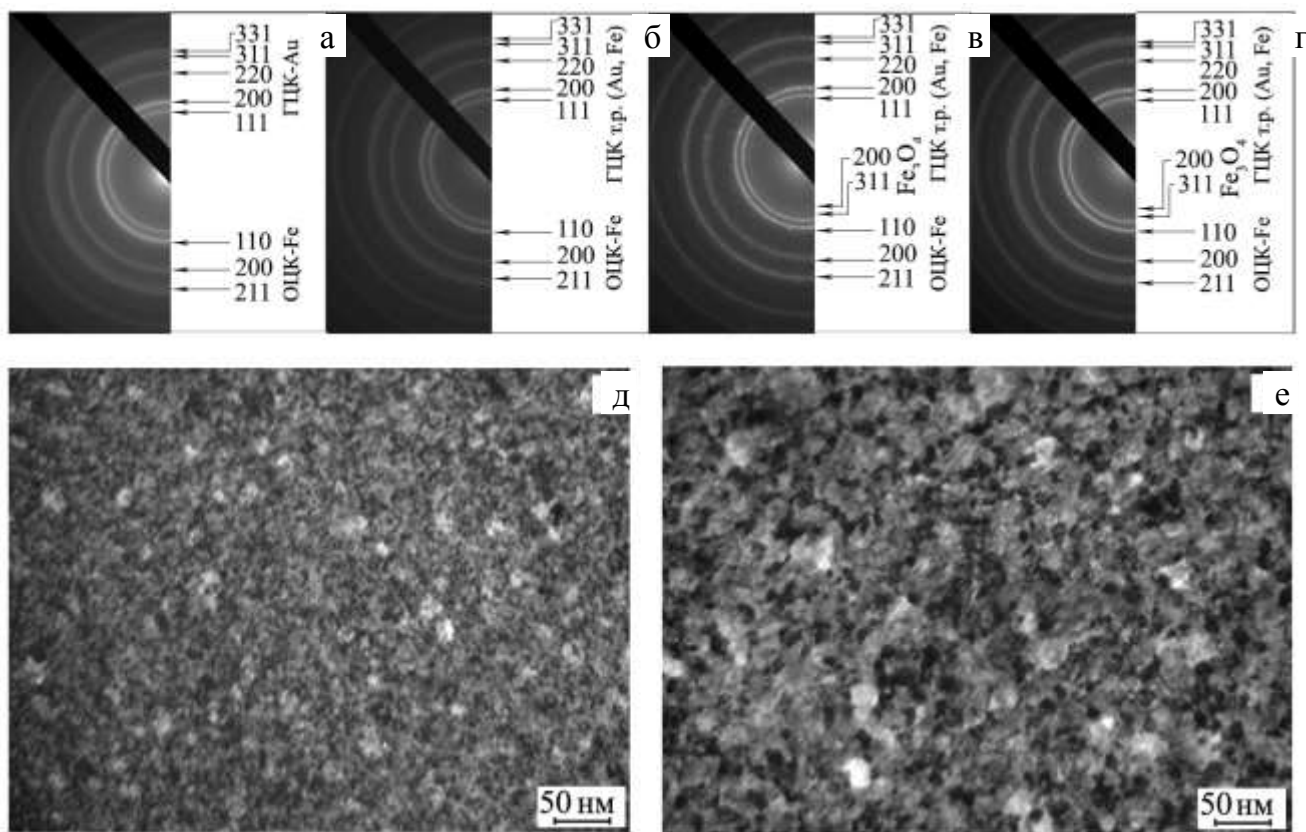


Рисунок 3.5 - Електронограми (а-г) та відповідна мікроструктура (д, е) плівки Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П безпосередньо після конденсації (а, д) та відпалювання до 700 (б), 800 (в) та 900 К (г, е)

також не спостерігаються і оксидні кільця. Термовідпалювання до температури  $T_6 = 700$  К приводить до утворення фази т.р. з параметром кристалічної ґратки  $\bar{a} = 0,406$  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 ( $d = 15\text{--}30$  нм) не повністю провзаємодіяли з Ag, утворився надлишок атомів Fe, які і відповідають фазі ОЦК-Fe.

Таблиця 3.5 - Розшифрування дифракційних картин від плівкової системи Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П безпосередньо після конденсації та термообробки при 700, 800 та 900 К

№	$T_e = 300 \text{ K}$				$T_e = 700 \text{ K}$				$T_e = 800 \text{ K}$				$T_e = 900 \text{ K}$			
	$d, \text{ нм}$	фаза	$hkl$	$a, \text{ нм}$	$d, \text{ нм}$	фаза	$hkl$	$a, \text{ нм}$	$d, \text{ нм}$	фаза	$hkl$	$a, \text{ нм}$	$d, \text{ нм}$	фаза	$hkl$	$a, \text{ нм}$
1	–	–	–	–	–	–	–	–	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- Au	111	0,407	0,235	т.р.-(Au, Fe)	111	0,407	0,235	т.р.-( Au, Fe)	111	0,407	0,235	т.р.-(Au, Fe)	111	0,407
4	0,204	ГЦК- Au	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
		ОЦК- -Fe	110	0,288		ОЦК- Fe	110	0,288		ОЦК- Fe	110	0,288		ОЦК- Fe	110	0,288
5	0,144	ГЦК- Au	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
		ОЦК- Fe	200	0,288		ОЦК- Fe	200	0,288		ОЦК- Fe	200	0,288		ОЦК- Fe	200	0,288
6	0,123	ГЦК- Au	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- Au	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
Au: $\bar{a} = 0,407 \pm 0,0004 \text{ нм}$ ; ОЦК-Fe: $\bar{a} = 0,288 \pm 0,0003 \text{ нм}$ ; Au: $a_0 = 0,408 \text{ нм}$ ; ОЦК-Fe: $a_0 = 0,287 \text{ нм}$					т.р.-(Au, Fe): $\bar{a} = 0,407 \text{ нм}$ ; ОЦК-Fe: $\bar{a} = 0,288 \text{ нм}$ ;				т.р.-(Au, Fe): $\bar{a} = 0,407 \pm 0,0004 \text{ нм}$ ; ОЦК-Fe: $\bar{a} = 0,288 \text{ нм}$ ;				т.р.-(Au, Fe): $\bar{a} = 0,407 \pm 0,0002 \text{ нм}$ ; ОЦК-Fe: $\bar{a} = 0,288 \text{ нм}$ ;			

### 3.3 Узагальнення результатів вивчення процесів фазоутворення у гранульованих плівкових сплавах

Узагальнення результатів проведених досліджень вказують на те, що в системах з концентрацією Co менше 40 ат. % майже не спостерігається утворення гранул. Концентрація 40–60 ат.% Co є оптимальною для утворення стабільного гранульованого плівкового сплаву.

Утворення обмежених твердих розчинів 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  $a_{т.р.} = 0,406$  нм у термовідпаленому до 800 К (рис.3.6). Із цього рисунка видно, що у плівкових системах на основі Fe і Au з обмеженою взаємною розчинністю компонент, правило Вегарда абсолютно не виконується, що слід і очікувати. Аналогічні результати нами та іншими авторами отримані і на прикладі плівкової системи на основі Co і Ag (рис.3.7). У 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 лінії 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>.

У роботі [56] наведені міркування стосовно кристалохімічних аспектів утворення т.р.-(Au, Co) та т.р.-(Ag, Co). Для атомів Ag і Au відношення ковалентних радіусів до радіусу атома Co 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 ґратці. Також відомо, 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. Компоненти в системі

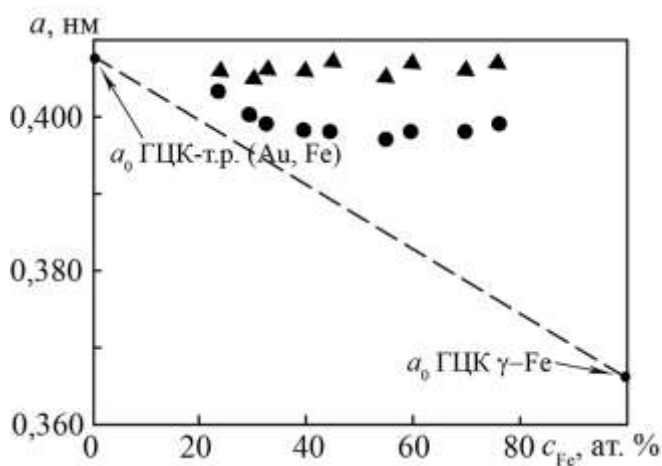


Рисунок 3.6 - Залежність параметра гратки  $a$  від загальної концентрації атомів Fe у плівковій системі Fe/Au/Fe/(П): ▲ – середній параметр ГЦК-гратки для т.р. (Au, Fe); ● – параметр гратки  $a_{111}$ , розрахований за величиною  $d_{111}$ . Пунктирна лінія відповідає правилу Вегарда

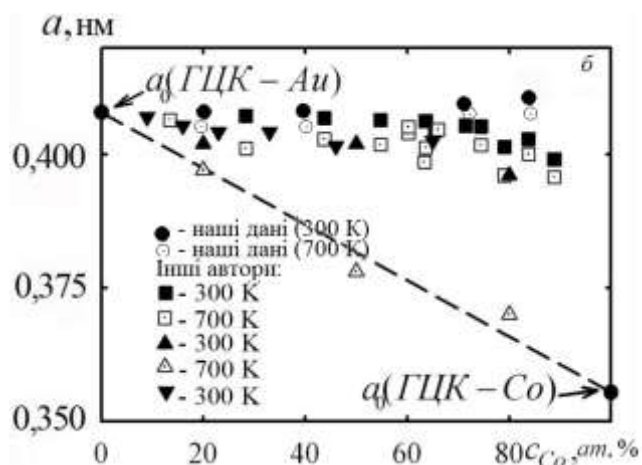
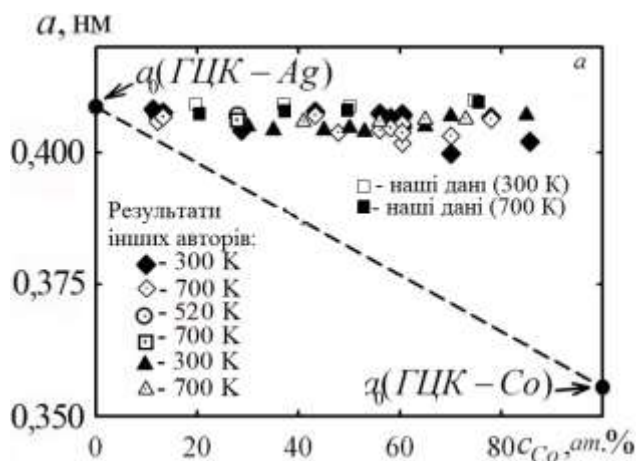


Рисунок 3.7 - Залежність параметра гратки ГЦК т.р.-(Ag, Co) (а) та т.р.-(Au, Co) (б) від загальної концентрації атомів Co у плівковій системі. Пунктирна лінія відповідає правилу Вегарда

Co-Ag згідно діаграми стану взагалі не змішується, хоча розчинність атомів Co в Ag у рідкому стані має величину до 3,3 ат. %. Висновок про утворення т.р.-(Au, Co) підтверджується результатами роботи [57], в якій проведені комплексні дослідження магнітоопору, елементного складу і мікроструктури плівкового сплаву на основі Au і Co, отриманого методом магнетронного розпилення. Електронно-мікроскопічні дослідження показали, що розмір гранул Co в матриці Au складає 1,5–3,0 нм. Як видно за рис. 3.7 б, максимальне відхилення

параметру від табличного значення ГЦК-Ag 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.

Виходячи з отриманих даних, 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 магнітних компонент.

## 4 ДИФУЗІЙНІ ПРОЦЕСИ В ПЛІВКОВИХ СИСТЕМАХ

### 4.1 Дослідження дифузійних процесів методом ЕДС - аналізу

Як відмічалось у розділі 2, процеси взаємної дифузії атомів у дво-, три- та чотиришарових плівкових системах досліджувались методом рентгенівського мікроаналізу з використання енерго-дисперсійного аналізатора та методом вторинно-іонної мас-спектрометрії. Перевага першого методу, хоча він і менш точний, полягає в тому, що він неруйнівний метод на відміну від ВІМС. Типові ЕДС спектри для плівкових систем Ag/Co/П, Au/Co/П, Fe/Au/Fe/П та Fe/Ag/Fe/П наведені на рис.4.1 – 4.3. У табл. 4.1 представлені результати елементного аналізу окремих компонент, які використовувались при розрахунках коефіцієнтів взаємної дифузії атомів. Як можна бачити з розшифрування ЕДС-спектрів концентраційний вміст магнітної компоненти (атомів Co або Fe) залежить від області сканування на поверхні зразка. Наприклад, середнє значення концентрації у зразку Au(20)/Co(29)/П, як показали експериментальні дослідження, становить 62,9 ат. % Co, що також дещо більше розрахункового значення за співвідношенням (2.1) – 65,4 ат.% Co. Таке неузгодження може також відображати той факт, що магнітна компонента дуже нерівномірно локалізується в ГЦК-решітці немагнітного матеріалу.

Енерго-дисперсійний аналіз нами також проводився із використанням растрового мікроскопу JSM-6400. Спектри енерго-дисперсійного рентгенівського аналізу, які були отримані для систем Au(2)/Co(30)/Fe(30)/MgO(100) та Au(2)/Co(30)/Fe(30)/SiO<sub>2</sub>/Si (рис.4.4), свідчать про відсутність домішок в досліджуваних зразках, оскільки вони не мають додаткових піків, окрім Fe, Co, Au, Si, Mg та O.

Більш широкі технічні можливості приладу JSM-6400 дозволяють мікроаналіз і електронно-мікроскопічні дослідження проводити в один технологічний цикл, що проілюстровано на рис. 4.5.

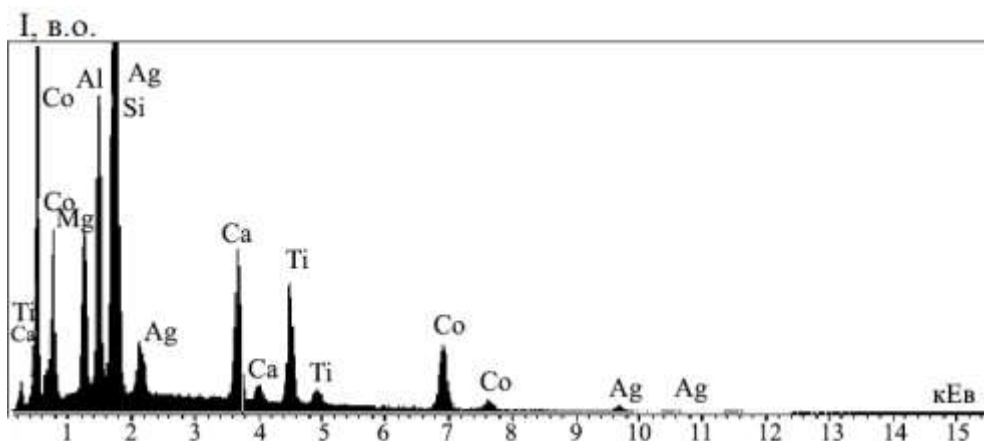


Рисунок 4.1 - ЕДС спектр від зразка Ag(34)/Co(15)/П термовідпаленого до 800 К

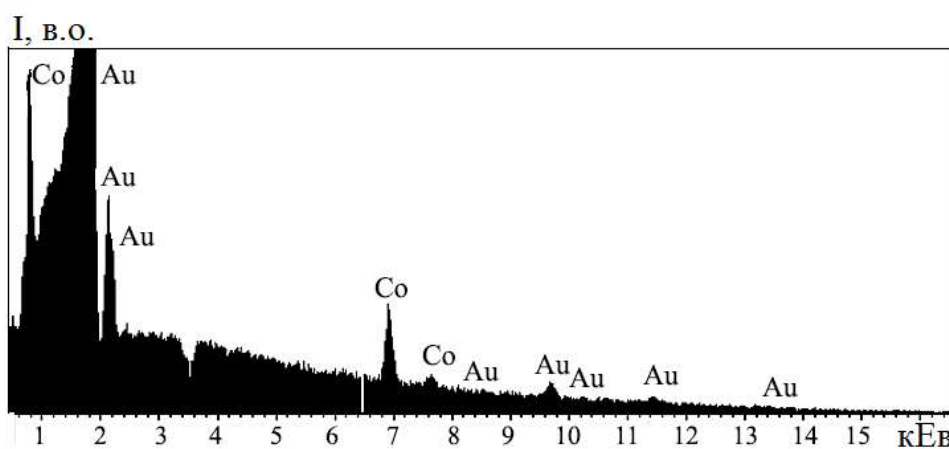


Рисунок 4.2 - ЕДС спектр від зразка Au(20)/Co(29)/П, термовідпаленого до 800 К

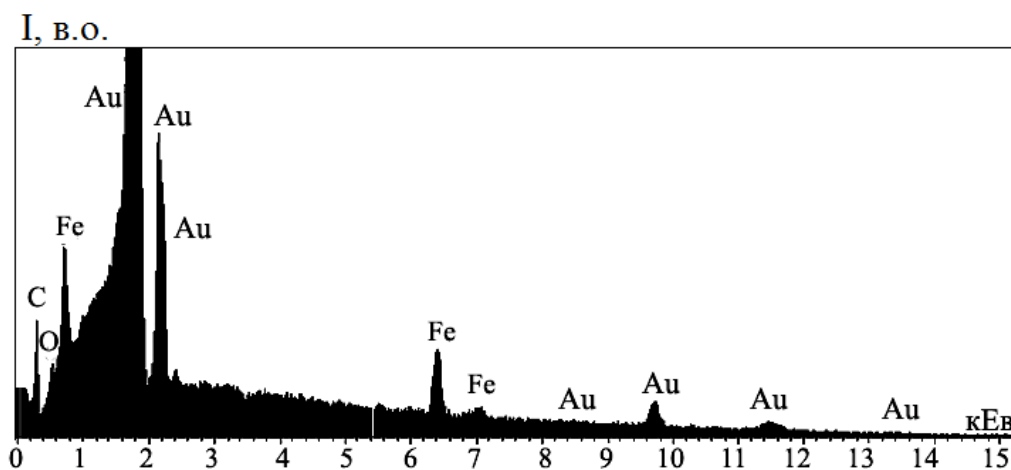
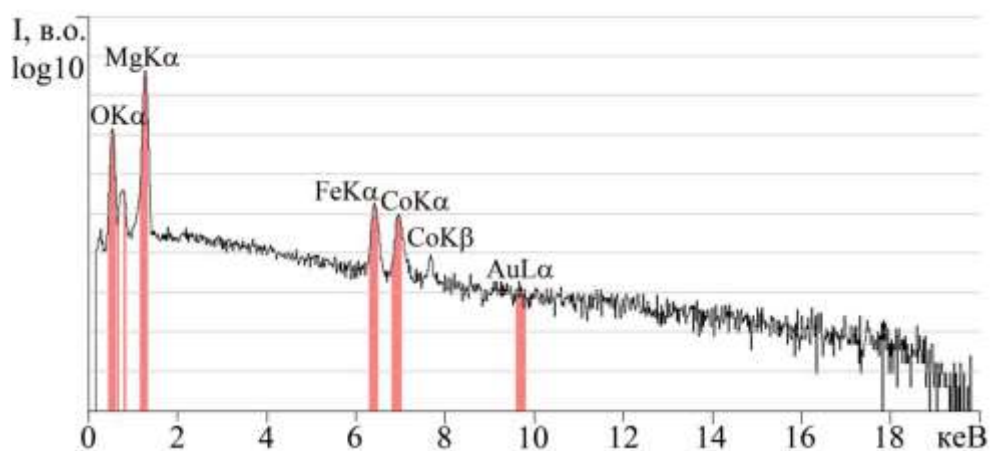


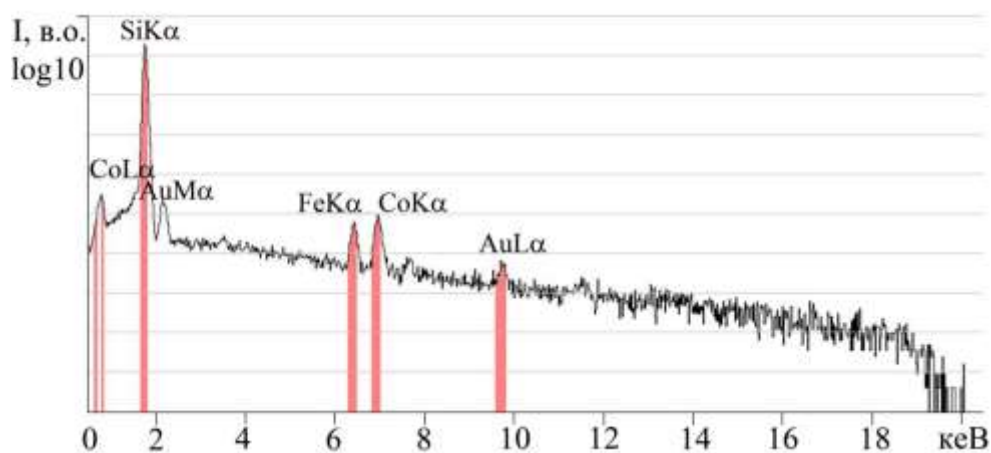
Рисунок 4.3 - ЕДС спектр від зразка Fe(5)/Au(25)/Fe(5)/П, термовідпаленого до 800 К

Таблиця 4.1 - ЕДС спектри від плівкових систем, термооброблених до 800 К

Характеристики спектру	Ag(34)/Co(15)/П		Au(20)/Co(29)/П	
	$c_{Co}$ , ат. %	$c_{Ag}$ , ат. %	$c_{Co}$ , ат. %	$c_{Au}$ , ат. %
Середнє значення концентрації	82,9	17,1	62,9	37,1
Станд. відхилення	0,4	0,4	0,2	0,2
Максимальне значення $c$	83,2	17,5	63,0	37,4
Мінімальне значення $c$	82,5	16,8	62,7	37,0



а



б

Рисунок 4.4 - ЕДС-спектри від систем Au(2)/Co(30)/Fe(30)/MgO(100) (а) та Au(2)/Co(30)/Fe(30)/SiO<sub>2</sub>/Si (б)



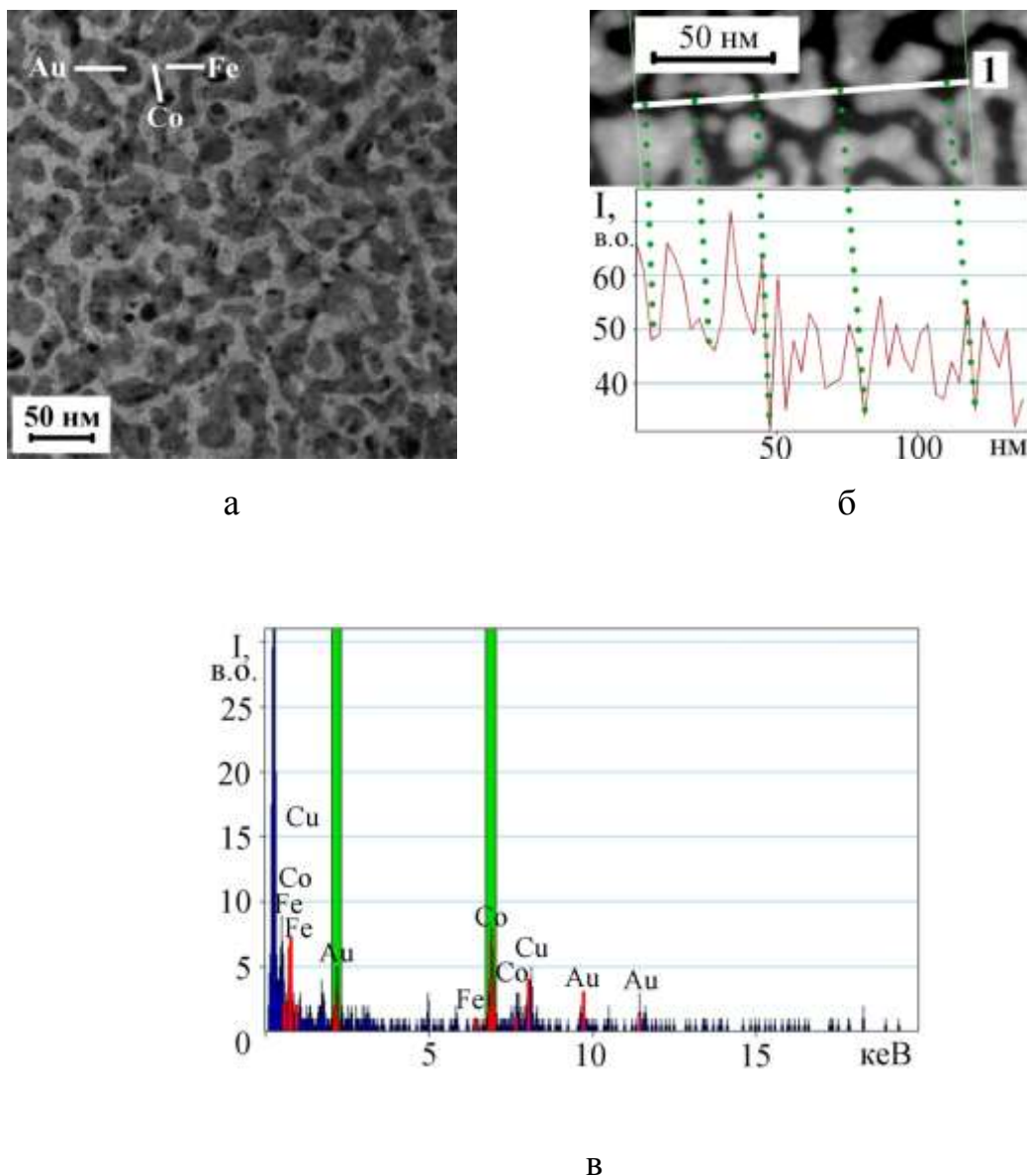


Рисунок 4.5 - Кристалічна структура плівки  $\text{Au}(3)/\text{Co}(20)/\text{Fe}(70)/\text{П}$  після відпалювання до 570 К (а) та фрагмент позиції (а), на якому помічена лінія 1, вздовж якої проводився елементний аналіз та визначалася концентрація Co (б) та ЕДС-спектр для системи  $\text{Au}(3)/\text{Co}(20)/\text{Fe}(70)/\text{П}$  (в)

Відмічаємо, що результати ЕДС-аналізу на двох вищевказаних приладах добре узгоджуються.

#### 4.2 Дослідження дифузійних процесів методом ВІМС

Проведені дослідження впливу матеріалу підкладки на інтенсивність протікання дифузійних процесів у двошарових системах  $\text{Fe}/\text{Co}/\text{П}$ . На основі

вимірювань методом ВІМС були отримані дифузійні профілі (рис.4.6), на основі яких були розраховані величини ефективних коефіцієнтів взаємної дифузії атомів у плівкових системах. Ці результати свідчать про дещо різну інтенсивність протікання дифузійних процесів у зразках, отриманих на підкладках MgO(100) чи на природньо окисленому кремнію (SiO<sub>2</sub>/Si) та про певний вплив ефекту Кіркендалла на зміщення межі поділу (МП) в обох випадках.

Оскільки співвідношення (2.2) дозволяє розрахувати лише інтегральний ефективний коефіцієнт взаємної дифузії, який обумовлений як мінімум трьома процесами: конденсацією атомів; дифузією, яка стимулюється первинним пучком іонів та дифузією атомів у процесі термообробки. У зв'язку з цим оцінка впливу КСД і ІСД на вигляд дифузійних профілів проводилася за допомогою співвідношення:

$$D(\hat{E}\tilde{N}\ddot{A} + {}^2\tilde{N}\ddot{A}) = \frac{l^2}{\tau_e}, \quad (4.1)$$

де  $l$  – довжина дифузійного пробігу атомів при конденсації;

$\tau_k$  – час конденсації.

Оцінка ефективних коефіцієнтів термічної дифузії здійснювалась за співвідношенням, повністю аналогічним (4.1), але при підстановці інших параметрів:

$$D(\hat{O}\ddot{A}) = \frac{(l - l_a)^2}{\tau_a} \quad (4.2)$$

де  $l_b$  – довжина дифузійного пробігу атомів при термодифузії;

$\tau_s$  – час відпалювання системи.

Результати розрахунків  $D(\text{КСД}+\text{ІСД})$  за формулою (4.1), які були проведені на основі експериментальних даних ВІМС (рис.2.2 або рис.4.6 а та рис.4.6 б), і  $D(\text{ТД})$  за формулою (4.2) (рис.4.6 в-д) для плівкових систем на основі Fe, Co і Au, наведені в табл.4.2. Якщо звернутись до літературних даних, (рис.1.10) [51], то,

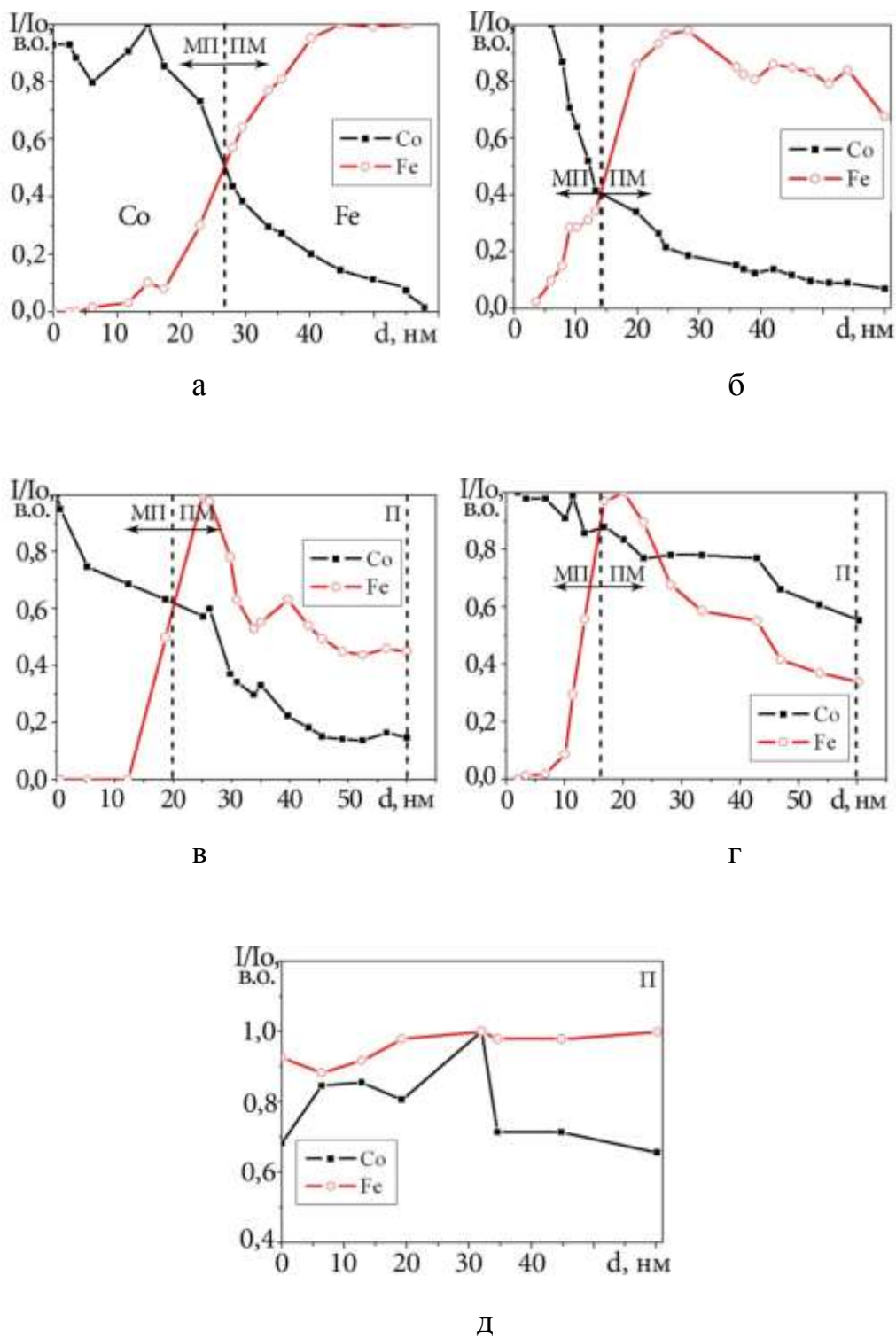


Рисунок 4.6 - Дифузійні профілі для плівкових систем Au(2)/Co(30)/Fe(30)/MgO (а,в) та Au(2)/Co(30)/Fe(30)/SiO<sub>2</sub>/Si (б,г,д) у невідпаленому (а,б) та відпаленому до 570 К (в,г), 1070 К (д) станах; МП – межа поділу, ПМ – площина Матано

Таблиця 4.2 - Коефіцієнти взаємної дифузії атомів Fe і Co у плівкових системах Au(2)/Co(30)/Fe(30)/MgO(100) та Au(2)/Co(30)/Fe(30)/SiO<sub>2</sub>/Si

Підкладка	Дифуз. пара	КСД+ІСД		ТД			
				$T_B = 570 \text{ K}$		$T_B = 1070 \text{ K}$	
		$l$ , нм	$D \cdot 10^{19}$ , м <sup>2</sup> /с	$l_e$ , нм	$D \cdot 10^{19}$ , м <sup>2</sup> /с	$l_e$ , нм	$D \cdot 10^{19}$ , м <sup>2</sup> /с
MgO(100)	Fe→Co	24	21,3	17	0,27	–	–
	Co→Fe	27	33,8	30	0,05	–	–
SiO <sub>2</sub> /Si	Fe→Co	27	27,0	24	0,05	30	5,0
	Co→Fe	30	41,7	30	5,00	30	5,0

наприклад, величина коефіцієнта взаємної дифузії атомів Au в ОЦК-Fe в масивних зразках має величину  $10^{-19}$  м<sup>2</sup>/с лише при температурі 1000 К (згідно даних [58] при температурі 1070К коефіцієнт взаємної дифузії атомів має значно більшу величину – порядку  $10^{-16}$  м<sup>2</sup>/с). Згідно знову ж таки даних [58], коефіцієнт взаємної дифузії атомів Co в ОЦК-Fe дорівнює  $3,1 \cdot 10^{-17}$  м<sup>2</sup>/с при  $T = 1050 \text{ K}$ , що на порядок перебільшує отримані нами величини (табл.4.2). Така різниця пояснюється нами різними температурами вимірювання дифузії в масивних зразках [58] і плівкових зразках (рис.4.6).

## ЧАСТИНА 2

### ЕЛЕКТРОФІЗИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ

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

##### 5.1 Попередні зауваження

Відкриття [59] нового типу матеріалів – гранульованих плівкових сплавів сприяло подальшому теоретичному і експериментальному вивченню не тільки явища гігантського магнітоопору (ГМО), але і магнітних та електрофізичних властивостей, таких як питомий опір ( $\rho$ ), термічний коефіцієнт опору (ТКО –  $\beta$ ), коефіцієнт тензочутливості (КТ –  $\gamma$ ), магнітоопір (МО), намагніченість (М) та ін. Формування магнітних гранул Co чи Fe у неферомагнітній матриці у вигляді твердого розчину (т.р.) атомів парамагнітних металів (наприклад, Cu, Ag або Au) обумовлює появу нових ефектів спінозалежного розсіювання електронів (СЗРЕ) у порівнянні з мультишарами без елементів гранульованого стану. Мова іде про те, що у випадку мультишарів на величину ГМО впливають такі процеси як спінорбітального розсіювання, обмінної взаємодії на парамагнітних домішках, електрон-магнонне розсіювання (див., наприклад, [60]). При переході до одношарових плівкових гранульованих сплавів не очікується велике значення ГМО, хоча поряд із вказаними вище механізмами розсіювання електронів з'являються два нових – розсіювання на поверхні і в об'ємі гранул [61], що призводить до додаткового зменшення (довжини спінодифузійного пробігу електронів ( $\lambda_0^{s-d}$ ). У квазікласичній теорії [61] допускається, що величина  $\lambda_0^{s-d}$  менше масштабу структурних неоднорідностей (середній радіус гранул ( $r_0$ ) та немагнітні міжгранульні проміжки, або фрагменти т.р. ( $\Delta l_{ss}$ ) між двома сусідніми гранулами). При такому допущенні не слід очікувати велике розрахункове значення ГМО у порівнянні із ГМО, отриманого у рамках квантового формалізма

Кубо, в якому допускається, що  $\lambda_0^{s-d} \gg r_0$ .

У роботі [62] в рамках мікроскопічного підходу було теоретично показано, що у гранульованих плівках може мати місце ефект анізотропії (порядка декількох %) як МО, так і ГМО, тобто їх величина залежить від орієнтації струму у площині плівки відносно намагніченості. Причиною АМО і АГМО є спонтанна анізотропія опору феромагнітного матеріалу в плівці. Автори [63] описали ефект від'ємного ГМО у гранульованих мікродротах, що пов'язано із СЗРЕ на локалізованих магнітних моментах атомів у міжгранулярних проміжках.

Нами запропоновані [64], [65] феноменологічні моделі для електрофізичних властивостей гранульованих одношарових плівок, які, при своїй простоті, дозволяють здійснювати порівняння із експериментами та прогнозування величин  $\rho$ , ТКО і КТ.

Основне співвідношення для ТКО можна подати у такому вигляді:

$$\beta = \beta_{SS} - \frac{4\beta_g \rho_g}{4\rho_g + \alpha\rho_{SS}} - \frac{\alpha\beta_{SS}\rho_{SS}}{4\rho_g + \alpha\rho_{SS}} + \frac{\beta_g \rho_g + \alpha\beta_{SS}\rho_{SS}}{\rho_g + \alpha\rho_{SS}}, \quad (5.1)$$

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

Відмітимо, що такою ж мірою перемішування атомів може бути величина  $\frac{d_{h_1 k_1 l_1}^{NM} + d_{h_2 k_2 l_2}^M}{2}$ , де  $d_{hkl}$  – міжплощинна відстань; hkl – індекси Міллера; NM і M – немагнітний і магнітний метал), як це запропоновано у роботі [66].

У граничних випадках величини  $\alpha$  співвідношення (5.1) може бути представлена так [67], [68]:

$$\beta \cong \beta_{ss} - \frac{4\beta_g \rho_g}{\alpha \rho_{ss}}, \alpha \gg 1; \beta \cong \beta_{ss} - \frac{\alpha \beta_{ss} \rho_{ss}}{4\rho_g}, \alpha \ll 1;$$

$$\beta \cong \beta_{ss} - \frac{4\beta_g \rho_g + \beta_{ss} \rho_{ss}}{4\rho_g + \rho_{ss}} + \frac{\beta_g \rho_g + \beta_{ss} \rho_{ss}}{\rho_g + \rho_{ss}}, \alpha \cong 1. \quad (5.2)$$

Поряд із теоретичними дослідженнями накопичений значний експериментальний матеріал стосовно фізичних властивостей гранульованих плівок. Ми відмітимо декілька робіт, які носять концептуальний характер. Перш за все класична робота [69], в якій викладена концепція антиферомагнітної між шарової взаємодії у багат шарових плівкових матеріалах, в т.ч. і на основі Co і Au, тобто у плівкових системах, в яких, як стане зрозумілим (див, наприклад, [70]), можуть реалізуватися елементи гранульованого стану. Фундаментального характеру дослідження проведені авторами роботи [71] стосовно ефекту впливу матеріалу і фонові домішки на інтерфейсні властивості. Ми також будемо мати на увазі великий об'єм експериментальних досліджень із заявленої тематики нашої роботи, представлених в оглядах [70], [72] – [75].

Насамкінець необхідно акцентувати увагу на двох обставинах, які мають безпосереднє відношення до проблеми гранульованих плівкових сплавів. По-перше, ми будемо чітко розрізняти гранульовані тверді розчини, які формуються у системах із обмеженою розчинністю магнітної компоненти у ГЦК решітці Cu, Ag чи Au. Зерномежова і обмежена об'ємна дифузія атомів магнітної компоненти спричиняє утворення окремих сегрегацій атомів, які не розчинилися у решітці немагнітної компоненти, у вигляді нанорозмірних гранул, як правило сферичної форми. Такий гранульований плівковий сплав (ГПС) може бути сформований при одночасній конденсації компонент (Me<sub>1</sub> + Me<sub>2</sub>)/П або при відповідній термообробці дво- чи багат шарових (наприклад, (Me<sub>3</sub>/Me<sub>2</sub>/Me<sub>1</sub>/П) плівкових систем. Поряд із цим ми будемо використовувати термін «квазігранульовані плівки» (КГП), які формуються шляхом конденсації острівцевої плівки (ОП) магнітної компоненти на шар

немагнітної компоненти із наступною верхнього шару немагнітної компоненти.

Таким чином, магнітні острівці (будем називати їх квазігранули), які, скоріше за все, будуть неправильної форми, впроваджуються у провідну матрицю (відмітимо, що це може бути і діелектрична (Д) матриця). Відмітимо, що автори [75] також розглядають три групи гранульованих плівок: магнітні ( $Me_1 - Me_2$ ) гранульовані плівки (1); магнітні ( $Me_1 -$  діелектрик) гранульовані плівки (2) та магнітні нанокластери, які впроваджені в плівки (3). На наш погляд більш правильно групу (3) називати квазігранульованою плівковою системою. В обох випадках як гранули, так і квазігранули будуть мати певний розподіл за розмірами. Відносно великі або малі гранули і острівці будуть давати різний внесок у величину ГМО, оскільки нанорозмірні гранули і острівці можуть мати суперпарамагнітні властивості [70]. До такого висновку прийшли автори [76] при дослідженні ГМО у гранульованих плівках на основі Co і Ag.

Однією із перших робіт, в якій вивчалися електрофізичні властивості (мова іде про ТКО) гранульованих мультишарів  $[Ag(4)/Co(0,2-1,0)]_{15}/P$ , є робота [73]. Автори установили, що при  $d_{Co} \leq 0,5$  нм залежність ТКО від  $d_{Co}$  стрибкоподібно змінює свій нахил та величину. Таку поведінку ТКО автори пояснюють супермагнітним станом гранул при  $d_{Co} \leq 0,5$  нм та ефективним спин-залежним розсіюванням електронів (СЗРЕ) на магнітних гранулах. Цей висновок частково підтверджується і вимірюванням питомого опору:  $\rho \cong 3,4 \cdot 10^{-7}$  Ом·м ( $d_{Co} < 0,5$  нм) і  $\rho \cong 2,8 \cdot 10^{-7}$  Ом·м ( $d_{Co} > 0,5$  нм), тобто низькоомний спіновий канал спричиняє загальне зменшення питомого опору і, у відповідності із співвідношенням  $\beta = (1/\rho)(\partial\rho/\partial T)$ , – збільшення ТКО.

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

Це було предметом нашого спеціального аналізу, що дозволило внести



ясність у дану проблему. Пропонуємо і будемо притримуватися таких позначень:

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

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

## 5.2 Методика і техніка експерименту

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

Для осадження Ag та Au користувалися методом резистивного випарування з вольфрамового випарника типу «гусарик», а для конденсації тугоплавких металів

використовували електронно-променеву гармату. Швидкість осадження становила 1-5 нм/с, що дало можливість більш точно контролювати товщину зразків ( $d$ ), яка вимірювалася двома методами: методом кварцового резонатора в процесі конденсації та оптичної інтерферометрії.

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

Для розрахунку концентрації атомів окремих компонент плівкових систем використовувалось співвідношення (2.1., ч.1).

Для підтвердження розрахункових значень проводились дослідження елементного складу зразків на растровому електронному мікроскопі РЕММА-102 JEOL, який обладнаний відповідними приставками та використовується для аналізу елементного складу речовини за довжиною хвилі або енергії квантів характеристичного рентгенівського випромінювання з подальшою обробкою за допомогою спеціального програмного забезпечення. Прискорююча напруга складала 20 кВ, діапазон збільшень – 1000 крат з часом експозиції запису спектру 100 с. На рис. 5.1 зображений приклад ЕДС спектру від плівкового зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, відпаленого до температури 800 К. Розрахунки, проведені за формулою (1.3), показали наступні результати:  $c_{\text{Fe}} = 53$  ат. %, що задовільно узгоджується з даними рис. 5.1 і табл. 5.1, які були отримані методом енергодисперсійного аналізу.

Вивчення терморезистивних властивостей проводили у вакуумній камері установки ВУП-5М при тиску залишкових газів  $10^{-4}$  Па. Для цього плівка розмірами 1 см  $\times$  1 мм конденсувалася на ситалову підкладку 2 см  $\times$  1 см із наперед нанесеними контактними майданчиками. Низькоомні контактні майданчики склалися з двох шарів металів. Спершу на підігріту підкладку

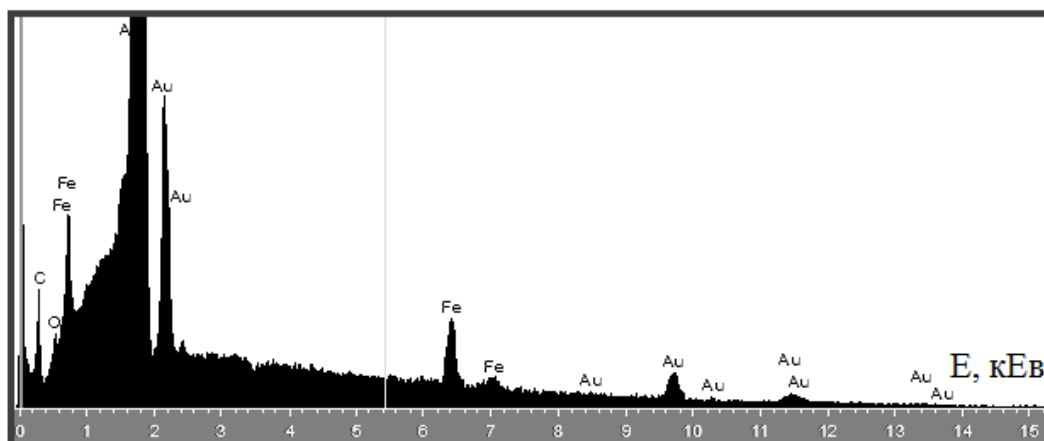


Рисунок 5.1 - Энергодисперсійний спектр від зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, термовідпаленого до 800 К

Таблиця 5.1 - Розшифровка ЕДС спектру від плівкового зразка Fe(10)/Ag(25)/Fe(10)/П, термовідпаленого до 800 К

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

конденсували тонку, товщиною близько 5 нм, плівку Cr для кращої адгезії, а потім відносно товстий (до 2 мкм) шар Cu. Покращення контакту «плівка / контакт» двошарової плівки Cu/Cr відбувалося шляхом сходинкоподібного осадження шарів металів. При отриманні залежності питомого опору зразків від температури використовувався пристрій, зображений на рис. 5.2. В результаті двох стабілізаційних циклів «нагрівання  $\leftrightarrow$  охолодження» при постійній швидкості 8–10 К/хв були отримані залежності  $R(T)$ . Потім, використовуючи співвідношення  $\beta = \frac{1}{R_n} \frac{\Delta R}{\Delta T}$  проводився розрахунок величини ТКО. Для вимірювання електричного опору застосовувався

високоточний цифровий вольтметр АРРА-109 з похибкою вимірювання опору  $\pm 0,06\%$ . Температуру контролювали за допомогою хромель-алюмелевої термопари та цифрового вольтметра UT-70В, що забезпечувало прийнятну точність  $\pm 1$  К.

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

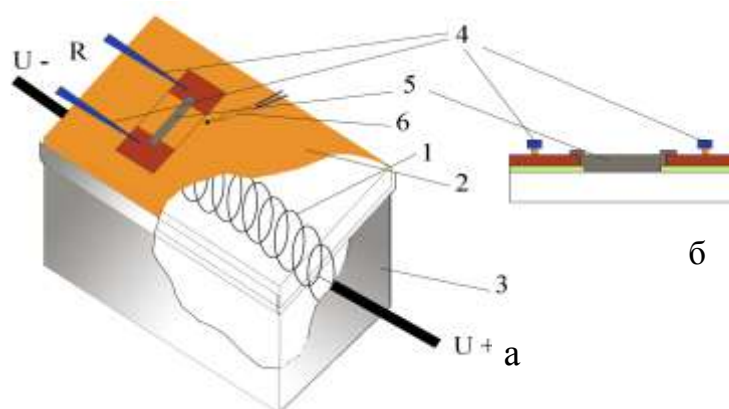


Рисунок 5.2 - Схема пристрою для відпалювання плівкових зразків зверху (а) і збоку (б): 1 – вольфрамова спіраль; 2 – столик; 3 – екрануючий кожух; 4 – притискні контакти; 5 – зразок; 6 – термопара

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

Більш детально зупинимося на використанні автоматизованого комплексу для дослідження тензорезистивних властивостей. На полістиролову відшліфовану та знежирену підкладку розміром  $7\text{ см} \times 2\text{ см} \times 0,4\text{ мм}$  спочатку наносились мідні низькоомні контактні майданчики, а потім осаджувалася плівка. Вимірювання опору проводили за чотириточковою схемою за допомогою позолочених контактів. Для отримання більш точних експериментальних даних при дослідженні тензорезистивних та магніторезистивних властивостей використовувалися автоматизовані комплексні системи для дослідження

відповідних характеристик. Автоматизований комплекс складається з наступних основних частин (рис. 5.3):

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

Більш детально зупинимося на другому блоці, який зображений на рис. 5.3. Основу автоматизованої системи складає 8-канальний 16-бітний сигма-дельта АЦП ADAM-4018, з допомогою якого за чотириточковою схемою вимірювався опір зразків, перетворювач інтерфейсів USB → RS 232/422/485 ADAM-4561, асинхронний двигун типу Д-219П1У3 та web-камера. Управління автоматизованим комплексом здійснювалося з допомогою комп'ютера під управлінням програми, розробленої в середовищі програмування LabView 2012 з використанням модуля машинного зору LabView Vision Development Module 8.2.

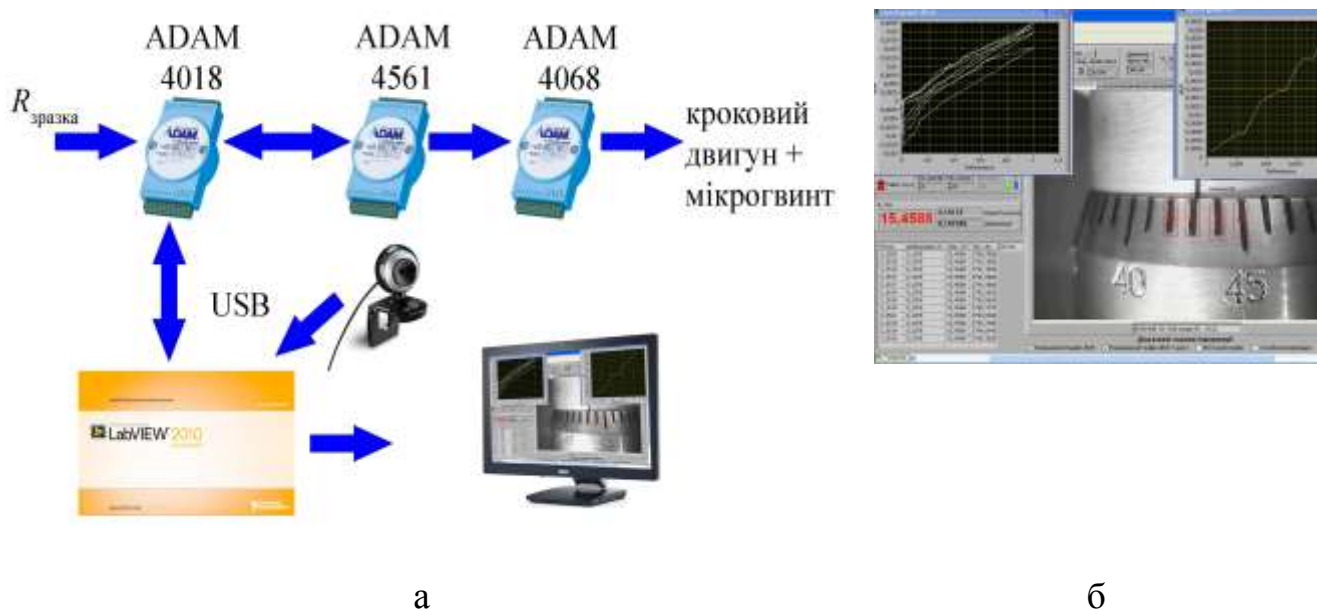


Рисунок 5.3 - Автоматизований комплекс для дослідження тензорезистивних властивостей: структурна схема автоматизованої системи (а); інтерфейс програми (б)

Підкладка з системою контактів та зразком одним кінцем фіксувалася до підкладкотримача, а другим – кріпилася до штоку мікрогвинта, який, у свою чергу, був під'єднаний до електродвигуна. Web-камера фіксувала переміщення мікрогвинта з частотою 10 кадрів/с. Одночасно з процесом розпізнання поділок на мікрогвинті фіксувався також опір зразків. Автоматизована система в одному вимірювальному циклі дає змогу досліджувати одночасно три різні тонкоплівкові зразки. Дана система дозволяє проводити дослідження тензоефекту в динамічному або статичному режимах із швидкістю деформації від 0 до 0,1 %/с. Вона також дозволяє дослідити робочий ресурс плівкових зразків як чутливих елементів тензодатчиків.

Диференціальний та інтегральний коефіцієнти поздовжньої тензочутливості розраховувалися за співвідношеннями:

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

де індекс «i» позначає деформаційний інтервал  $d\varepsilon_l$ . Приклади деформаційних залежностей та залежності  $(\gamma)_{dif}$  від  $\varepsilon_l$  наведені на рис.5.4.

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

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

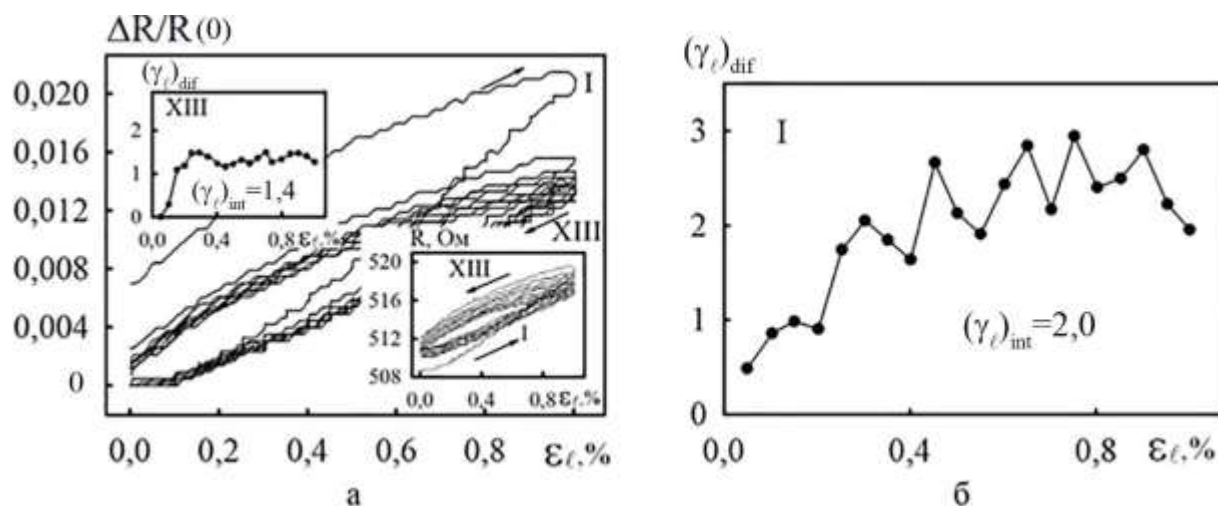


Рисунок 5.4 - Приклад залежностей  $\Delta R/R(0)$ ,  $(\gamma_{lm})_{dif}$  і  $R$  від  $\varepsilon_{\ell}$  (а) та залежності  $(\gamma_{lm})_{dif}$  від  $\varepsilon_{\ell}$  для I деформаційного циклу (б) для зразка Co(70)/П

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

### 5.3 Електрофізичні властивості плівок на основі Fe і Ag або Au

У літературі відома дуже обмежена кількість результатів стосовно електрофізичних властивостей гранульованих плівок на основі Fe і Ag. Мова іде про температурну залежність опору, концентраційну залежність ТКО та дослідження тензоефекту. Одна із таких робіт [77] присвячена вивченню температурної залежності провідності епітаксильної багатошарової системи Fe/Ag на підкладках GaAs (100) та GaAs (110), яка розглядається як хороший кандидат спін-поляризованого інжектора електронів в GaAs гетероструктуру. Таким чином, робота [77] не має прямого відношення до предмету нашого розгляду. До деякої міри такий же висновок можна зробити стосовно роботи [78], в якій представлені результати дослідження температурної залежності опору (інтервал температур 50-300 К) гранульованих плівок із концентрацією  $c_{Fe} = 20-70$  ат.%, отриманих одночасним лазерним випаруванням. Особливість досліджень [78] полягає в тому, що плівки конденсувалися на два різних типи підкладок із р-типу Si, допированих

атомами В із шаром  $\text{SiO}_2$  (товщина 1-2 нм): підкладка товщиною 200 мкм із низьким питомим опором ( $1,5 \cdot 10^{-4}$  Ом·м) та підкладка товщиною 380 мкм із високим питомим опором ( $7 - 25 \cdot 10^{-2}$  Ом·м). Автори акцентують увагу на тому, що між підкладкою і шаром гранульованої плівки (товщина 120-150 нм) утворюється аморфний інтерфейс із атомів Ag, Fe і Si товщиною 7-10 нм, і, що такий інтерфейс формується при конденсації гранульованого сплаву на основі Co і Ag. Автори спостерігали різний характер температурної залежності опору гранульованих плівок: на низькоомній підкладці опір в інтервалі 70-212 К монотонно збільшується, як і у випадку високоомної підкладки в усьому температурному інтервалі (величина ТКО приблизно  $3 \cdot 10^{-4}$   $\text{K}^{-1}$ ), але починаючи із температури  $T > 200$  К, різко зменшується (ТКО  $\cong - 8 \cdot 10^{-3}$   $\text{K}^{-1}$ ). Після відпалювання плівок до 370 і 420 К характер температурної залежності в обох випадках не змінюється, лише приблизно у два рази зменшується величина опору.

Автори роботи [79] вивчали магнітні і транспортні властивості гранульованих мультишарів з різною товщиною спейсера Ag:  $[\text{Ag}(2,6)/\text{Fe}(0,2)]_{75}\text{Ag}(0,8 - 2,6)/\text{Si}(111)$ , де в дужках вказана товщина шарів у нм. При концентрації 10 ат.% Fe автори спостерігали високу дисперсність в ГЦК матриці Ag або областях розупорядкування. Питомий опір гранульованого композиту автори [79] представили у вигляді правила Маттісена із урахуванням електрон-магنونного розсіювання:

$$\rho(T, B) = \rho_0 + \rho_{\text{ph}}(T) + \rho_{\text{m}}(T, B), \quad (5.4)$$

де  $\rho_0$  – залишковий опір, який приблизно дорівнює  $\rho(4,2 \text{ К}; B)$ ;

$\rho_{\text{ph}}(T)$  – внесок у питомий опір електрон-фононної взаємодії;

$\rho_{\text{m}}(T, B)$  – внесок у питомий опір електрон-магنونної взаємодії.

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

$$\rho_{\text{ph}}(T) = \alpha_1 \left( \frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^2 dx}{e^x - 1}, \quad (5.5)$$



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

$\Theta_D$  – температура Дебая.

Розрахунок  $\rho_m(T, B)$  здійснювався за співвідношенням:

$$\rho_m(T, B) = a_2 \left[ s - \left( s + \frac{1}{2} \right) \coth \frac{(2s+1)g\mu_B B}{2kT} + \frac{1}{2} \coth \frac{g\mu_B B}{2kT} \right], \quad (5.6)$$

де  $s$  – загальна величина спіну;

$\mu_B$  – магнетон Бора;

$B$  – індукція магнітного поля.

При деякій непереконливості у точності розрахунків (наприклад, автори брали величину  $\Theta_D \approx 210$  К; використовували величини  $s = 17$  або  $12,5\mu_B$  для різних товщин спейсерів) у роботі [79] отримали дуже цікаві результати стосовно температурної залежності  $\rho_{ph}(T)$  та  $\rho_m(T, B)$ . Було встановлено, що  $\rho(T, 0)/\rho_0$  змінюється у межах від 1,35 ( $T \cong 0$  К) до 2,07 ( $T \cong 300$  К), а  $\rho(T, B)/\rho_0$  – межах від 1,0 ( $T \cong 0$  К;  $B = 12$  Т) до 2,07 ( $T \cong 300$  К;  $B = 12$  Т). Дещо неочікувано малою виявилася величина  $\rho_m(T, B)$  у порівнянні із  $\rho_0$ . Наприклад, при  $B = 12$  Т  $\rho_m(T, B)/\rho_0 \cong 0$  (при  $T \approx 0$  К) і збільшується до 0,11 (при  $s = 12,5\mu_B$ ) або 0,24 (при  $s = 17\mu_B$ ). Підкреслимо, що у даному випадку мова іде про СЗРЕ на магнітних моментах гранул ОЦК Fe у матриці т.р. Ag(Fe). При цьому автори враховують можливе СЗРЕ на магнітних моментах доменів т.р.

Нами були проведені дослідження температурної залежності електрофізичних властивостей (питомий опір і ТКО) гранульованих сплавів, які формувалися методами одночасної ((Ag+Fe)/П) або послідовної (Fe/Ag/Fe/П) конденсації компонент при  $T_s = 400$  К із подальшою термообробкою при  $T_a \cong 800$  К. Електрографічні та електронно-мікроскопічні дослідження вказують на те, що уже в процесі конденсації формується ГЦК т.р. Ag(Fe) (рис. 5.5), хоча відомо що робота [23], в якій ілюструється відхилення від правила Вегарда у т.р. Ag(Fe), оскільки розчинність атомів Fe у ГЦК решітці Ag дуже обмежена. У той же час, аналіз

відносних інтенсивностей ліній (111) і (222) (рис. 5.5 а, в) не виключає висновку про те, що у вихідному стані до деякої міри зберігається індивідуальність окремих шарів, а перерозподіл інтенсивностей ліній пов'язаний із співпаданням міжплощинних відстаней (100)Ag і (110)Fe, (220)Ag і (200)Fe, (222)Ag і (211)Fe.

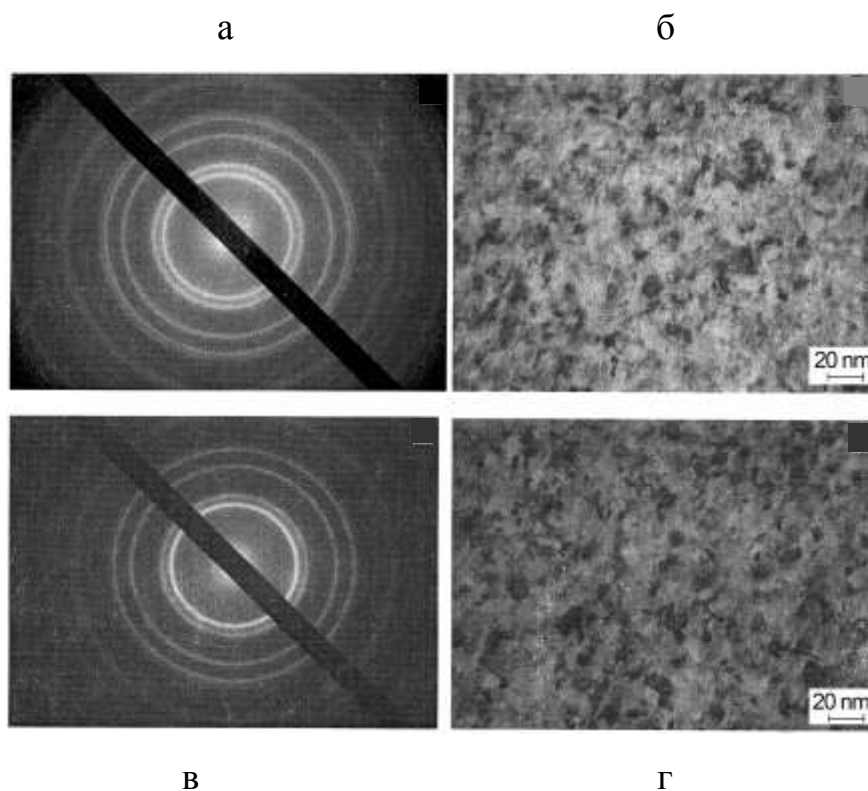


Рисунок 5.5 - Дифракція електронів (а, в) та мікроструктура (б, г) гранульованого плівкового сплаву, сформованого при пошаровій конденсації системи Fe(5)/Ag(10)/Fe(10)/П

При цьому параметри решіток мають величину  $a(\text{Ag}) = 0,4080$  нм (у масивному Ag  $a_0 = 0,4086$  нм) і  $a(\alpha\text{-Fe}) = 0,8710$  нм (у масивному  $\alpha\text{-Fe}$   $a_0 = 0,2866$  нм, що співпадає із результатами робіт [79] – [83], в яких фазовий аналіз був здійснений на XRD [82], [83] або дифракції електронів [82], [84]. У той же час, при іонному змішуванні мультишарів певною відносно малою дозою опромінення іонами Хе [84] або Ar [82] також спостерігається двофазний стан ГЦК Ag + ОЦК Fe. Відмітимо також, що на рис. 5.5 не фіксуються чітко гранули  $\alpha\text{-Fe}$ , як і в роботах [82], [85]

(результати робіт [85], [86] не можна розглядати як приклад формування досконалої гранульованої системи, оскільки автори впроваджували кластери Fe в матрицю Ag). У роботах [80], [82] спостерігалися гранули неправильної форми, як на рис. 5.5. Автори [83] моделювали гранули у вигляді частинок сферичної і еліптичної форми, які мають складну будову (рис.5.6) і можуть дотикатися.

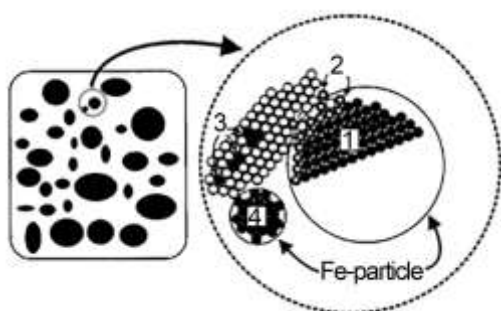


Рисунок 5.6 - Структура гранул Fe у т.р. Ag(Fe):  
1 – масивний  $\alpha$ -Fe; 2 – інтерфейс на межі гранули  $\alpha$ -Fe і т.р. Ag(Fe); 3 – атоми Fe у решітці т.р. Ag(Fe); 4 – гранула  $\gamma$ -Fe. Із роботи [94]

Температурна залежність  $\rho$  і ТКО для зразків, сформованих пошаровою конденсацією у вигляді тришарової плівки Fe/Ag/Fe/П, представлені на рис. 5.7. Не дивлячись на суттєву відміну величини  $\rho$  згідно наших і даних роботи [72], оскільки діапазон товщин відрізняється на один-два порядки, то зерномежове і поверхневе розсіювання електронів дає значний внесок у величину питомого опору.

Нами була здійснена на прикладі плівкових систем на основі Fe і Cu та Co і Ag апробація співвідношень (5.2) і отримана хороша відповідність експериментальних і розрахункових даних. Результати [87] вказують на таку ж задовільну відповідність і у випадку плівок на основі Ag і Fe. Узагальнені результати із деякими даними роботи [72] представлені у табл. 5.2.

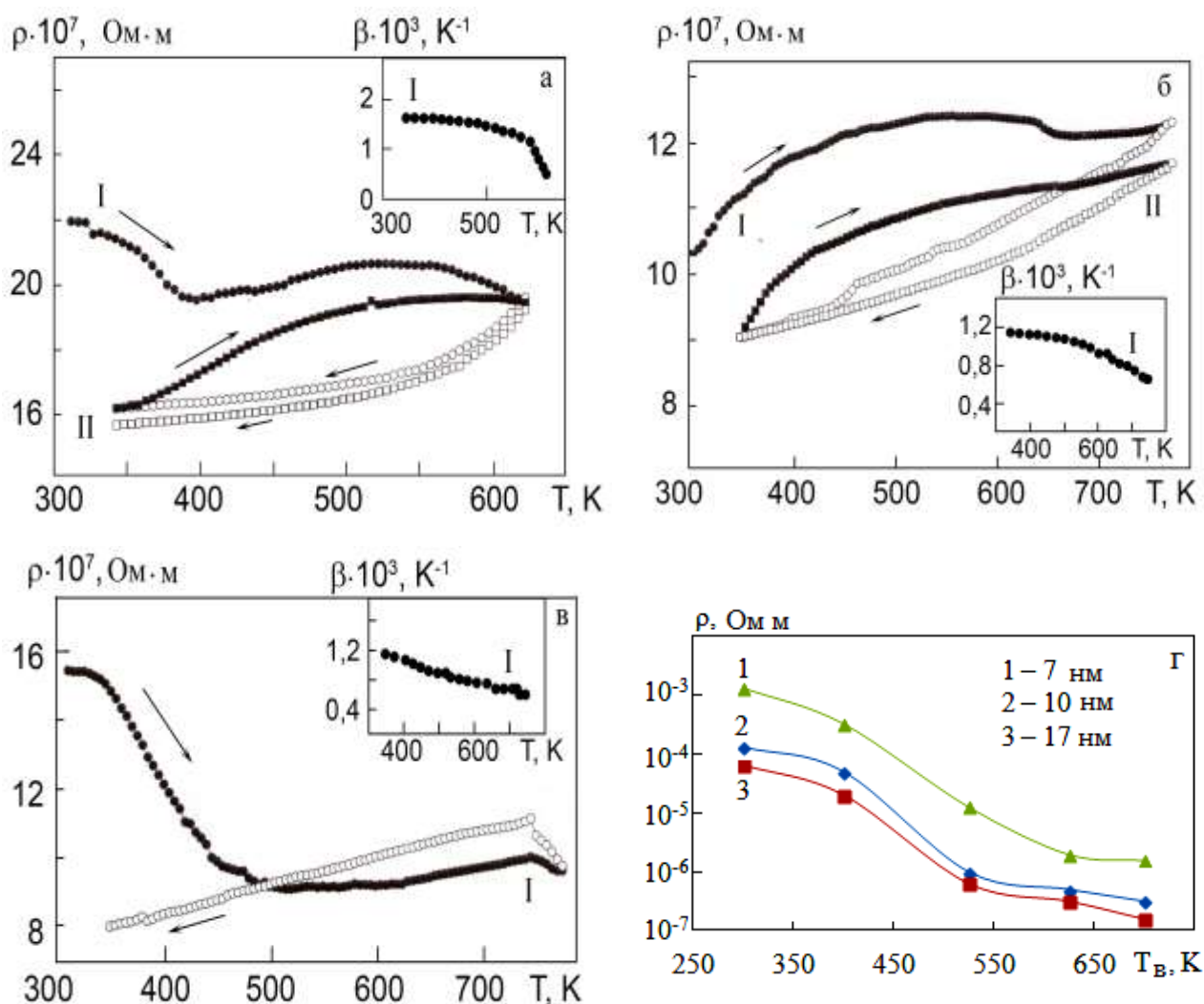


Рисунок 5.7 - Температурна залежність  $\rho$  і ТКО для плівкових систем, сформованих у вигляді тришарової плівки: Fe(5)/Ag(5)/Fe(5)/П (а); Fe(5)/Ag(10)/Fe(10)/П (б); Fe(10)/Ag(30)/Fe(10)/П (в) та плівок Fe (г) різної товщини.  $T_{\text{в}}$  – температура відпалювання. I, II – номери термостабілізаційних циклів

Таблиця 5.2 – Електрофізичні властивості гранульованих плівок

Плівкова система у вихідному стані (нм)	Заг. товщина т.р., нм	$c_{\text{Fe}}$ , ат. %	$T_e$ , К	$\rho \cdot 10^7$ , Ом·м	$\beta \cdot 10^3$ , К <sup>-1</sup>
Fe(5)/Ag(5)/Fe(5)/П	15		300	15,64	1,6
			500	16,52	1,4
			800	19,41	0,4
Fe(5)/Ag(10)/Fe(10)/П	25		300	9,03	1,2
			500	9,65	1,1
			800	11,25	0,7
Fe(10)/Ag(30)/ Fe(10)/П	30		300	7,96	1,2
			500	8,84	1,1
			800	9,95	0,6
Fe/Ag/П	200 – 1000	20	300	3,13	[72]

#### 5.4 Електрофізичні властивості плівок на основі Со і Аg або Аu

Типову температурну залежність питомого опору для плівок на основі Со і Аg або Аu проілюстровано на рис. 5.8. При нагріванні протягом першого циклу в інтервалі температур 300 – 600 К має місце незначне збільшення питомого опору, а потім зменшенням на проміжку 600 – 850 К, що може бути пов'язано із залікуванням дефектної структури і процесами рекристалізації, які спричиняють зменшення внеску зерномежового розсіювання носіїв струму у загальний опір системи. При охолодженні питомий опір монотонно зменшується, що пояснюється завершенням релаксаційних процесів вже на першому циклі термообробки. На рис.5.9 представлені типові результати, які ілюструють розмірні, температурні та концентраційні ефекти у ТКО гранульованих плівкових сплавів.

На рис. 5.10 представлена експериментальна залежність ТКО від ефективної концентрації атомів Со у плівкових системах, отриманих при послідовній (точки 1

і 3) або одночасній (точки 2 і 4) конденсації плівкових систем із загальною товщиною 40 – 50 нм. Ці результати із точністю до 10 % узгоджуються із розрахунковими на основі співвідношення (5.1). У системах на основі Co та Ag або Au через обмежену взаємну розчинність, про що говорилося вище, відбувається гранулоутворення. Приклади мікрознімків [84] з великою роздільною здатністю гранульованих сплавів на основі Co та Ag або Au представлені на рис. 5.11.

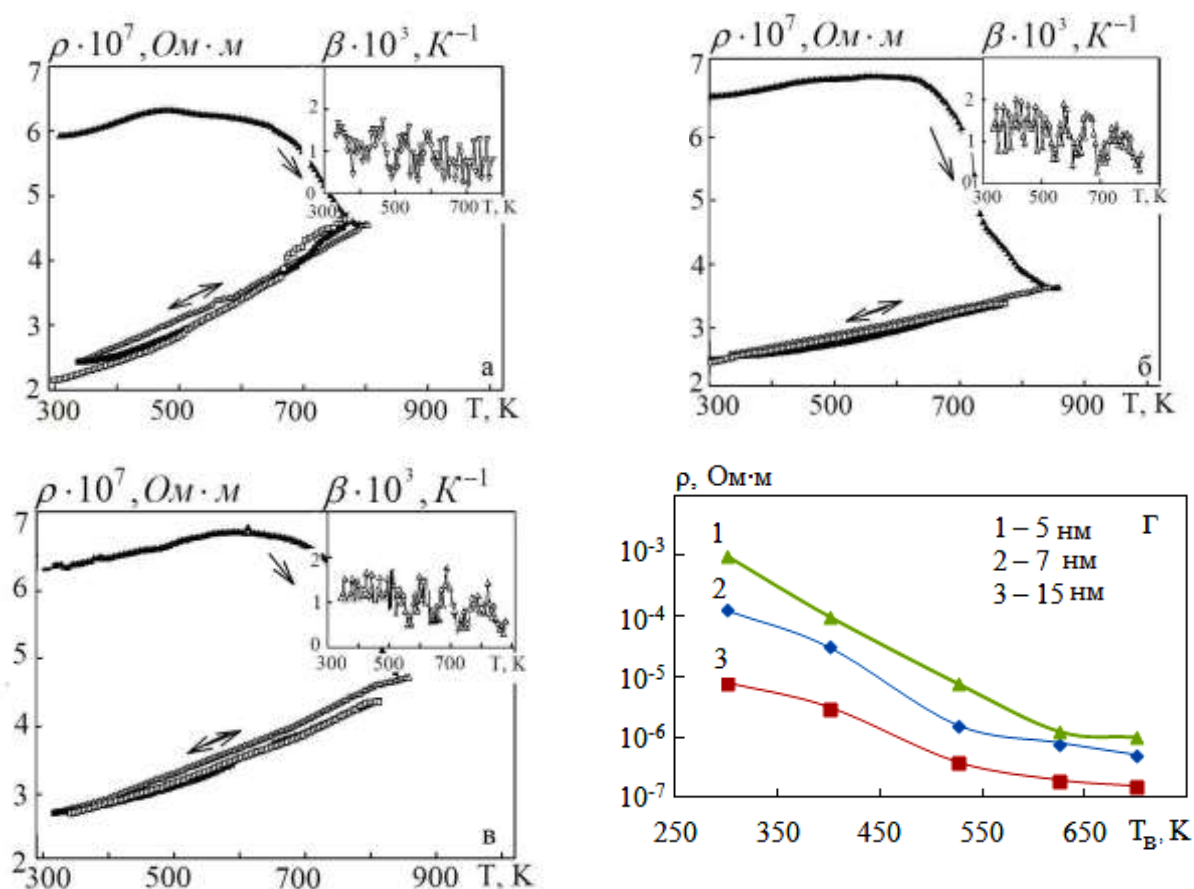


Рисунок 5.8 - Залежність питомого опору та ТКО (на вставках) від температури для плівок Ag(34)/Co(15)/П (а), Ag(21)/Co(18)/П (б) та [Ag(22)+Co(15)]/П (в) та залежність  $\rho$  від  $T_{\text{в}}$  одношарових плівок Co (г). Ефективна концентрація атомів Co, ат. %: 32 (а), 52 (б) і 45 (в)

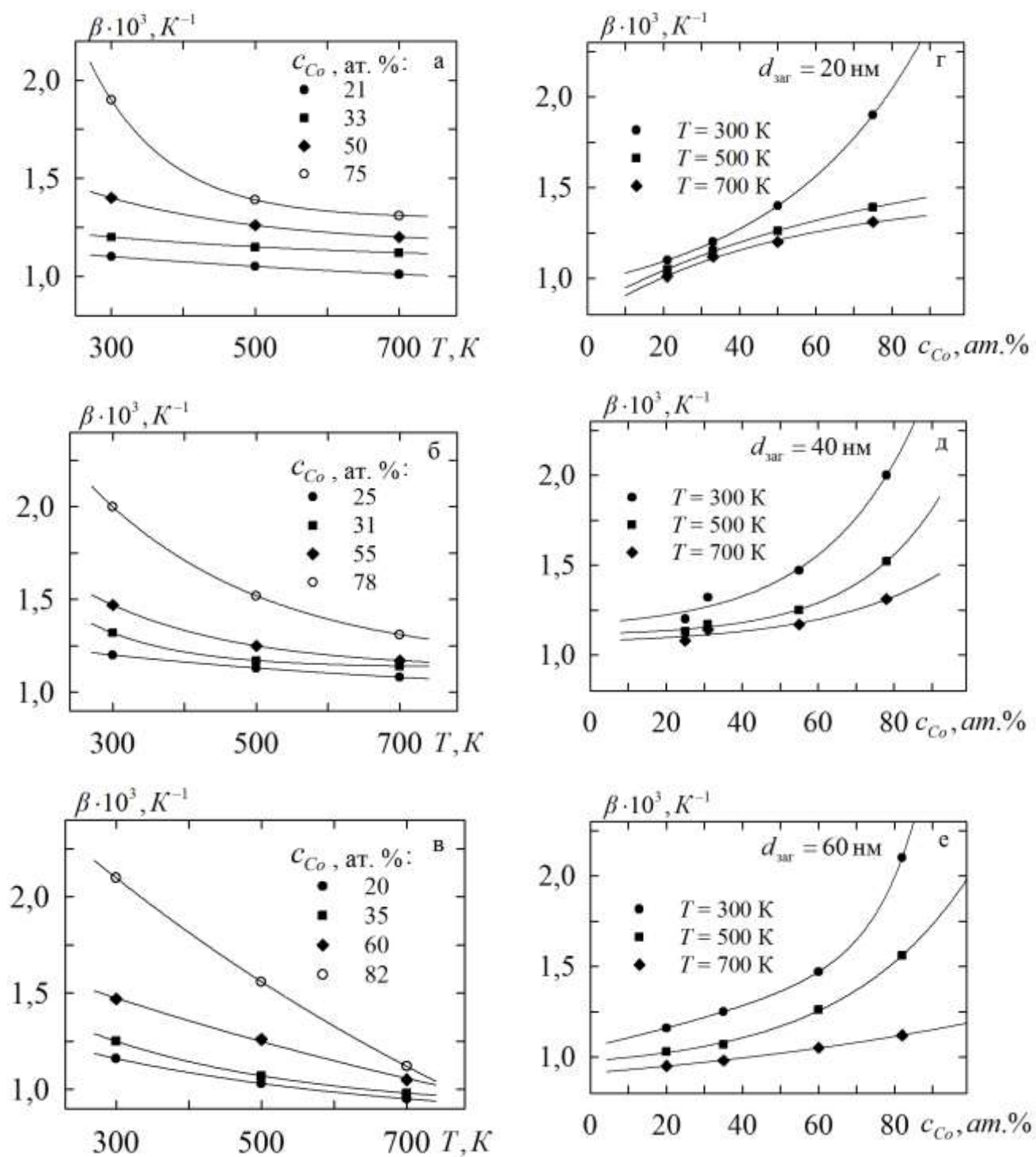


Рисунок 5.9 - Температурні концентраційні залежності ТКО для двокон-понентних плівкових систем у вихідному стані Ag/Co/П з різною концентрацією атомів Со та загальною товщиною  $d = 20$  (а, г), 40 (б, д) і 60 нм (в, е)

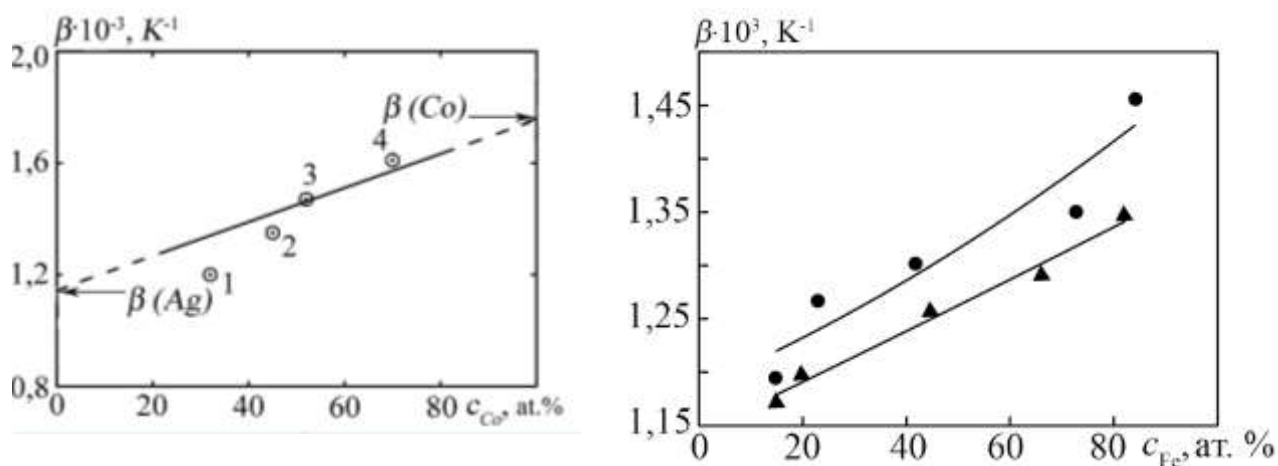


Рисунок 5.10 - Концентраційна залежність  $\beta$  при  $T = 300$  К для гранульованих т.р. на основі Co і Ag (а) та Fe і Au (б): точки 1 і 3 (послідовна конденсація) та 2 і 4 (одночасна); величини  $\beta(Ag)$  і  $\beta(Co)$  відповідають плівкам товщиною 40 нм (а); загальна товщина плівок  $d = 15$  (●) і 25 нм (▲) (б)

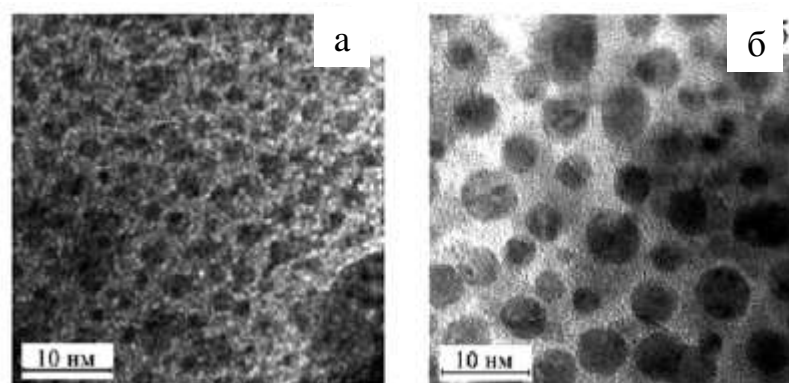


Рисунок 5.11 - Мікроструктура гранульованого сплаву на основі Ag і Co (а, б) у невідпаленому (а) та відпаленому до 600 К (б). Із роботи [26]

У процитованих роботах [83], [84] була проведена кореляція між структурно-фазовим станом та магніторезистивними властивостями. У багатошарових плівкових системах та сплавах на основі Co і Ag або Au через обмежену взаємну розчинність відбувається активне гранулоутворення. Відмітимо, що автори [84] спостерігали тонку структуру гранул (рис. 5.11 б), яка полягає в тому, що гранули розміром  $D = 20\text{--}25$  нм складаються із 20–30 кластерів розміром 3 нм. Подібну, але не так чітко виражену, кластерну структуру гранул спостерігали також автори



[85].

Аналіз мікроснімків вказує на те, що у відпалених зразках середня відстань між гранулами Co складає  $l = 10\text{--}30$  нм, а відношення  $D/l = 0,7\text{--}1$  або 1 для відпалених сплавів на основі Co і Ag [84]. У плівках на основі Au і Co магнітні гранули Co мають дещо менші розміри у порівнянні із плівками на основі Ag і Co, в яких розміри гранул 3 – 6 нм, і сильно залежать від умов формування плівок.

У роботі [88] мова йде про наносплав Co і Au у вигляді плівок товщиною 50 нм з різним процентним відношенням компонент. Так середній розмір гранул в сплавах навіть після відпалювання до температур 870 К не перевищує 4 нм.

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

У роботах [90], [91] детально вивчено вплив процесів росту і відпалювання на структуру і магнітні властивості мультишарів  $[\text{Co}/\text{Au}]_n/\text{П}$  з ультратонким шаром  $d_{\text{Co}} = 0,6$  нм [90] та з товщиною  $d_{\text{Co}} = 0,6; 0,9$  і  $1,2$  нм [91]. Установлено, що процес відпалювання дуже в значній мірі впливає на магнітні властивості. Аналогічні результати отримані у роботі [92] для випадку безструктурних плівкових систем на основі Co і Au, отриманих методом електроосадження. Детальні дослідження фазових перетворень в гранульованих сплавах на основі Fe і Au при  $c = 20$  і  $30$  ат.% Fe проведені в роботі [93]. Із суттєвих результатів, отриманих в цій роботі, необхідно відмітити, що після відпалювання в сплаві утворювалась ГЦК-фаза, збагачена атомами заліза.

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

### 6.1 Тензоефект у плівкових системах на основі Fe і Ag або Au

Систематичні дослідження фазового складу плівок на основі Fe і Au були проведені у роботах [87] – [93], автори яких спостерігали формування ГЦК т.р. Ag(Fe) із параметром решітки  $a = 0,400 - 0,404$  нм [87], [88], [92], [93], який при збільшенні температури до 820 К зменшується [88] до величини  $a = 0,399$  нм. Очевидно, що таке зменшення можна пояснити процесами упорядкування в т.р. Ag(Fe) при відпалюванні зразків. Відмітимо, що автори [91] спостерігали в т.р. Ag(Fe) величину  $a = 0,417$  нм, що, на їх думку, означає можливість формування ГЦК т.р. не тільки на основі Ag, але і  $\gamma$ -Fe.

Згідно даних [87], [89] при збільшенні концентрації до 80 ат.% Fe [87] чи до 65 ат.% Fe [89] відбувається фазовий перехід до т.р. ( $\alpha$ -Fe) (згідно наших даних [93] цей перехід відбувається при  $c_{Fe} > 60$  ат.% (рис. 6.1), що підтверджує результат [89]). Відмітимо, що автори [89] також спостерігали початок цього фазового переходу при збільшенні  $c_{Fe}$  від 36 до 66 ат.%.

Перехід т.р. Ag(Fe)  $\rightarrow$  т.р. $\alpha$ -Fe(Ag) супроводжується диспергуванням кристалічної структури, і її можна трактувати як квазіаморфною (рис.6.2, 6.3). Автори [87], [89] вказують на те, що т.р. Ag(Fe) невпорядкований до концентрації приблизно 50 ат.% Fe, коли формуються нанокластери на основі впорядкованого т.р. (Fe, Au) із структурою  $L1_0$  [90], [91] і параметрами тетрагональної решітки  $a = 0,367$  і  $c = 0,360$  нм [91]. У випадку [90] фаза  $L1_0$  формувалася у мультишарах  $[Fe1ML/Au1ML]_{100}$ . Відмітимо, що структура  $L1_0$  утворюється на основі перехідних (Fe, Co, Mn) і благородних (Pt, Pd, Au, Ir або Rh) металів. Як видно, у переліку благородних металів відсутній Ag і це означає, що у т.р.  $\alpha$ -Fe(Ag) не відбуваються процеси упорядкування, хоча фазовий (концентраційний) перехід ГЦК т.р. Ag(Fe)  $\rightarrow$  ОЦК т.р.  $\alpha$ -Fe(Ag) відбувається при  $c_{Fe} < 50$  ат.%.

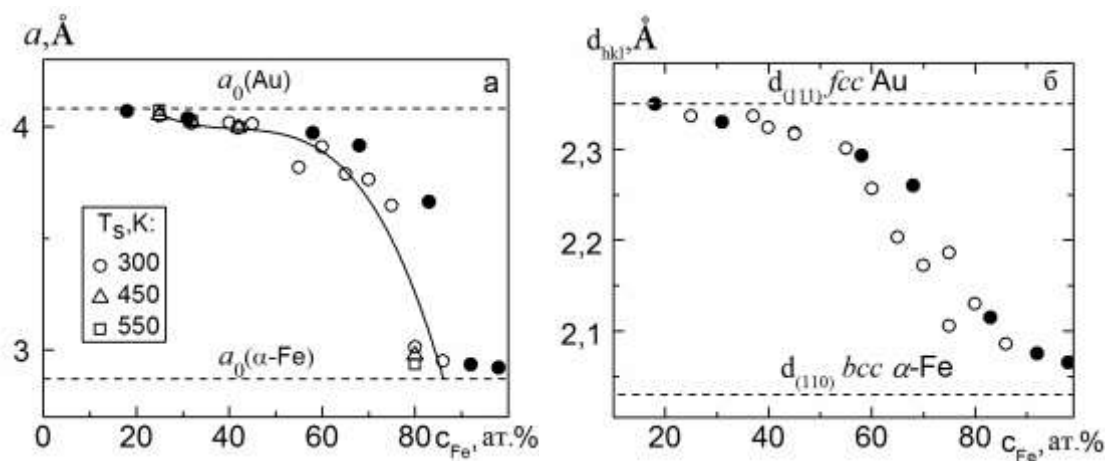


Рисунок 6.1 - Залежність ОЦК параметра решітки (а) і міжплощинної відстані для (111) т.р. Ag(Fe) і (110) т.р.  $\alpha$ -Fe(Ag) при 300 К. • – дані роботи [87]

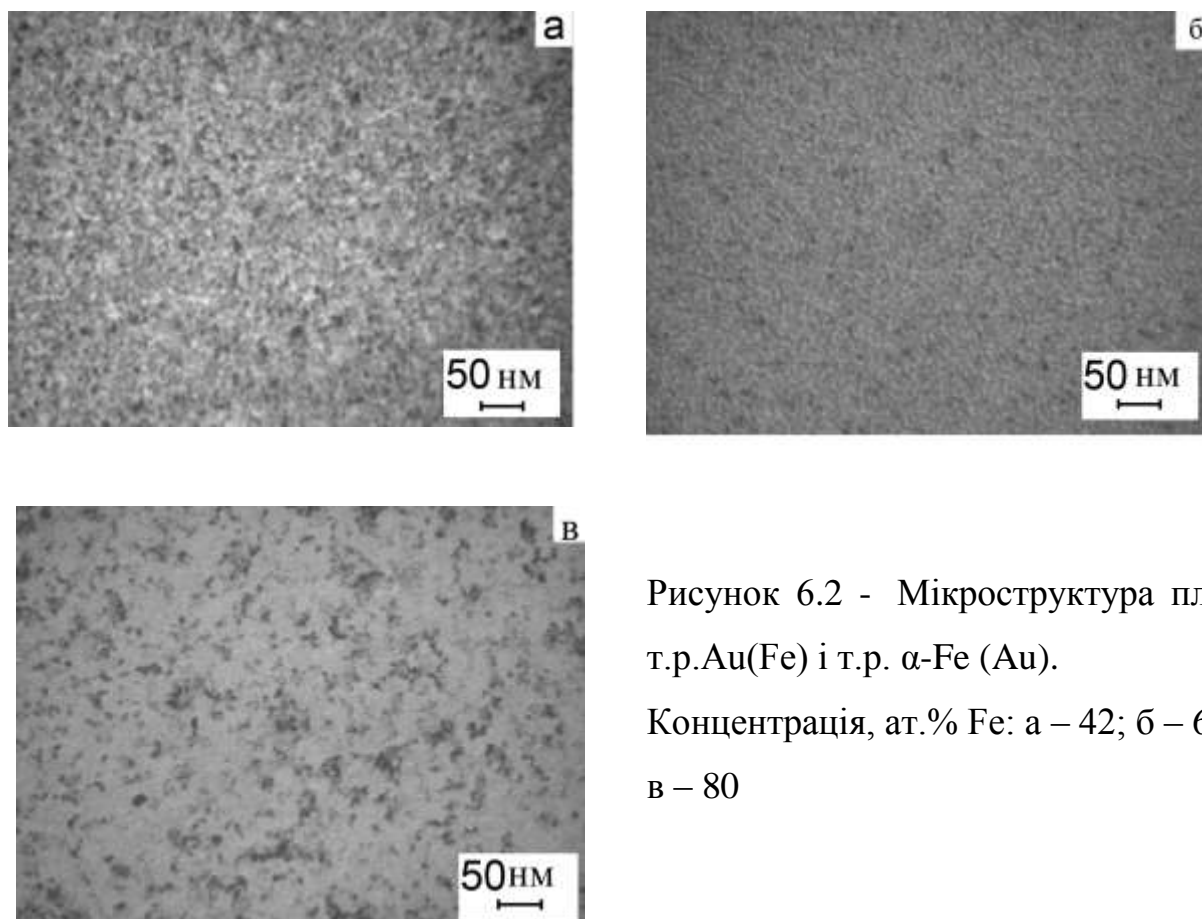


Рисунок 6.2 - Мікроструктура плівок т.р. Au(Fe) і т.р.  $\alpha$ -Fe (Au).

Концентрація, ат.% Fe: а – 42; б – 65 і в – 80

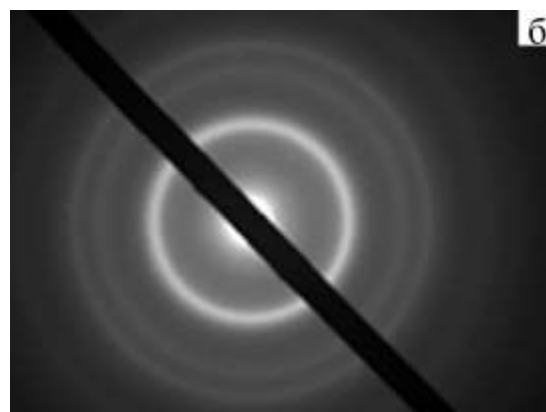
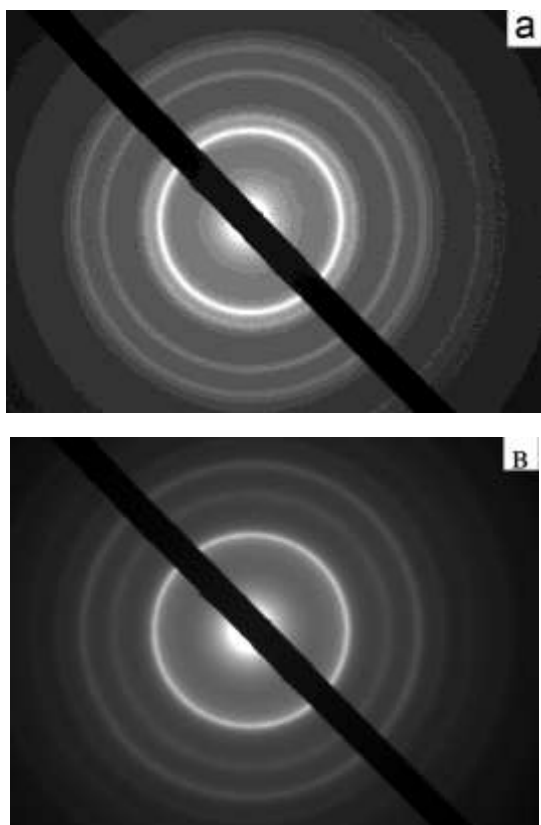


Рисунок 6.3 - Дифракційні картини від плівок т.р. Au(Fe) і т.р.  $\alpha$ -Fe (Au). Концентрація, ат.% Fe: а – 42; б – 65 і в – 80

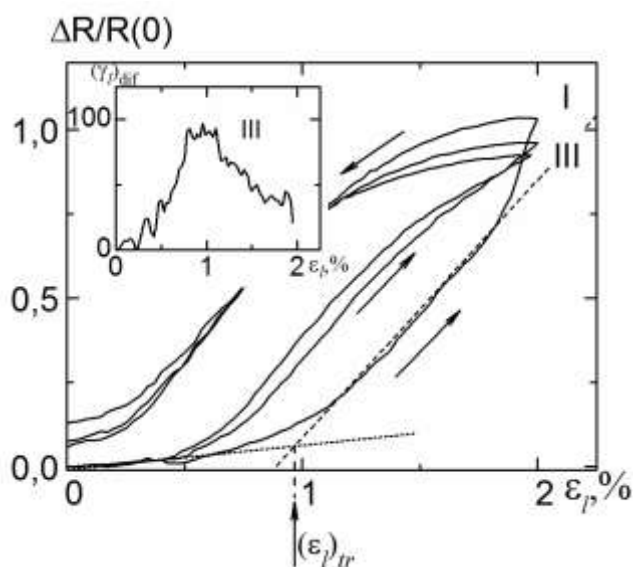


Рисунок 6.4 - До методики визначення деформації переходу  $\varepsilon_{ltr}$  на основі деформаційної залежності опору. На вставці - залежність  $(\gamma_l)_{dif}$  від  $\varepsilon_l$ . Концентрація  $c_{Fe} = 70$  ат.%. I – III – номери деформаційних циклів

Електрофізичні властивості (питомий опір, ТКО і КТ) гранульованих плівкових систем на основі Au і Fe залишалися маловивченими. Можливим поясненням цього може бути той факт, що ці властивості споріднених плівкових систем на основі Ag і Fe на даний момент достатньо вивчені і отримані результати, як ми переконалися, можна екстраполювати і на випадок гранульованих плівкових сплавів т.р. Au(Fe) чи т.р.  $\alpha$ -Fe (Au). В той час, отримані нами результати стосовно концентраційної аномалії деформаційного ефекту в перехідній області т.р. Au(Fe)  $\rightarrow$  т.р.  $\alpha$ -Fe (Au) дозволяють сподіватися на можливість реалізації подібних аномалій на прикладі інших властивостей. Мікроструктура і дифракційні картини від плівок т.р. Au(Fe) і т.р.  $\alpha$ -Fe (Au) наведені на рис.6.2 і 6.3 відповідно.

Експериментальні деформаційні залежності  $\Delta R/R(0)$  від  $\epsilon_1$ ; ( $R(\epsilon_1)$  і  $R(0)$  – електричний опір при деформації  $\epsilon_1$  і при  $\epsilon_1 = 0$ ) були отримані в області пружної і пластичної деформації. Величини деформації  $\epsilon_{ltr.}$ , при якій відбувається перехід від пружної до пластичної деформації, ми визначали за точкою перетину дотичних до двох ділянок деформаційної залежності (приклад такої процедури наведений на рис.6.4). Крім цього для уточнення величини  $\epsilon_{ltr.}$  використовувалися дані робіт [68] – [70], а для урахування розмірних ефектів у механічних властивостях користувалися аналізом, здійсненим у роботі [71].

На рис.6.5 наведені приклади деформаційних залежностей для плівкових зразків, структурний стан яких відповідає рис.6.2 а (рис.6.5 а) або рис.6.2 б (рис.6.5 б).

Відмітимо, що максимум на залежності  $(\gamma_l)_{dif}$  від  $\epsilon_1$  спостерігалися нами і раніше [64], [65] на прикладі інших плівкових матеріалів. Природа максимуму пов'язана із переходом зразків від пружної до пластичної деформації.

Результати обробки деформаційних залежностей представлені на рис.6.6, із якого витікає, що в інтервалі концентрацій  $c_{Fe} \cong 55 - 70$  ат.% має місце аномальне збільшення величини  $(\gamma_l)_{int}$ . Цей результат можна пояснити диспергуванням т.р. Au(Fe) при збільшенні величини  $c_{Fe}$  (рис.6.2 і 6.3). Згідно теоретичної моделі

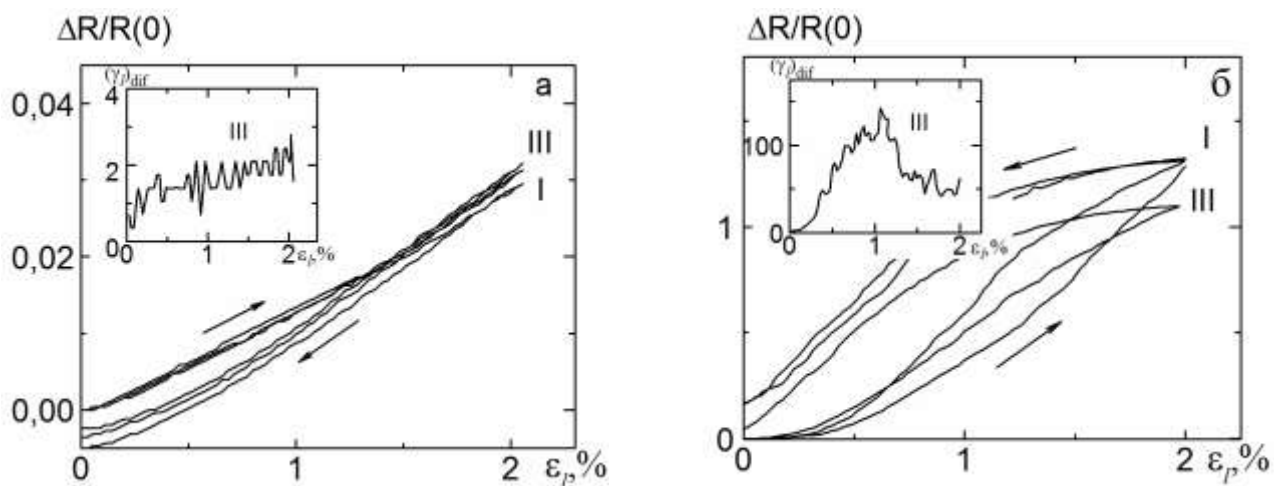


Рисунок 6.5 - Приклади деформаційних залежностей для плівок т.р. Au(Fe). Концентрація, ат.% Fe: а - 32; б - 55. На вставці – залежність  $(\gamma_l)_{\text{dif}}$  від  $\varepsilon_l$

ефективного довжини вільного пробігу Тельє і Тоссе [94] величина  $(\gamma_l)_{\text{int}}$  повністю визначається зерномежовим розсіюванням електронів, оскільки їх поверхневе розсіювання впливає лише на характер залежності  $(\gamma_l)_{\text{int}}$  від товщини плівкового зразка. Таким чином, збільшення ефективності зерномежового розсіювання електронів в інтервалі концентрацій  $c_{\text{Fe}} \cong 50 - 70$  ат.% є причиною аномального збільшення величини  $(\gamma_l)_{\text{int}}$ .

Виходячи із базового співвідношення для коефіцієнта поздовжньої тензочутливості

$$(\gamma_l)_{\text{int}} = -\frac{1}{\lambda_0} \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_l} + 2(1 + \mu_f), \quad (6.2)$$

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

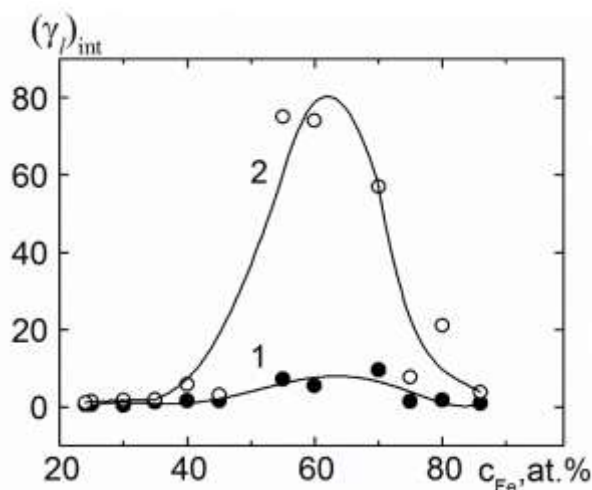


Рисунок 6.6 - Залежність  $(\gamma_l)_{int}$  від  $c_{Fe}$  при пружній (1) та пластичній (2) деформації плівок на основі Fe і Au

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

## 6.2 Тензоефект у плівкових системах на основі Co і Ag або Au

Нами були також проведені дослідження тензорезистивних властивостей гранульованих плівок на основі Ag і Co. Типові залежності  $\Delta R/R(0)$ ,  $R$ , і  $(\gamma_l)_{dif} = \frac{1}{R_i} \cdot \frac{\partial R_i}{\partial \varepsilon_{ii}}$  від  $\varepsilon_i$  представлені на рис. 6.7. Отримані середні значення добре корелюють з аналогічними величинами для одношарових плівок Ag(38)/П (тобто  $c_{Co} = 0$  ат.%) та Co(70)/П (тобто  $c_{Ag} = 0$  ат.%), що ілюструє рис. 6.8. Із представлених результатів звертає на себе увагу дуже низькі значення  $(\gamma_l)_{int}$ , що можна якісно пояснити, виходячи із співвідношення (6.1), згідно якого основний

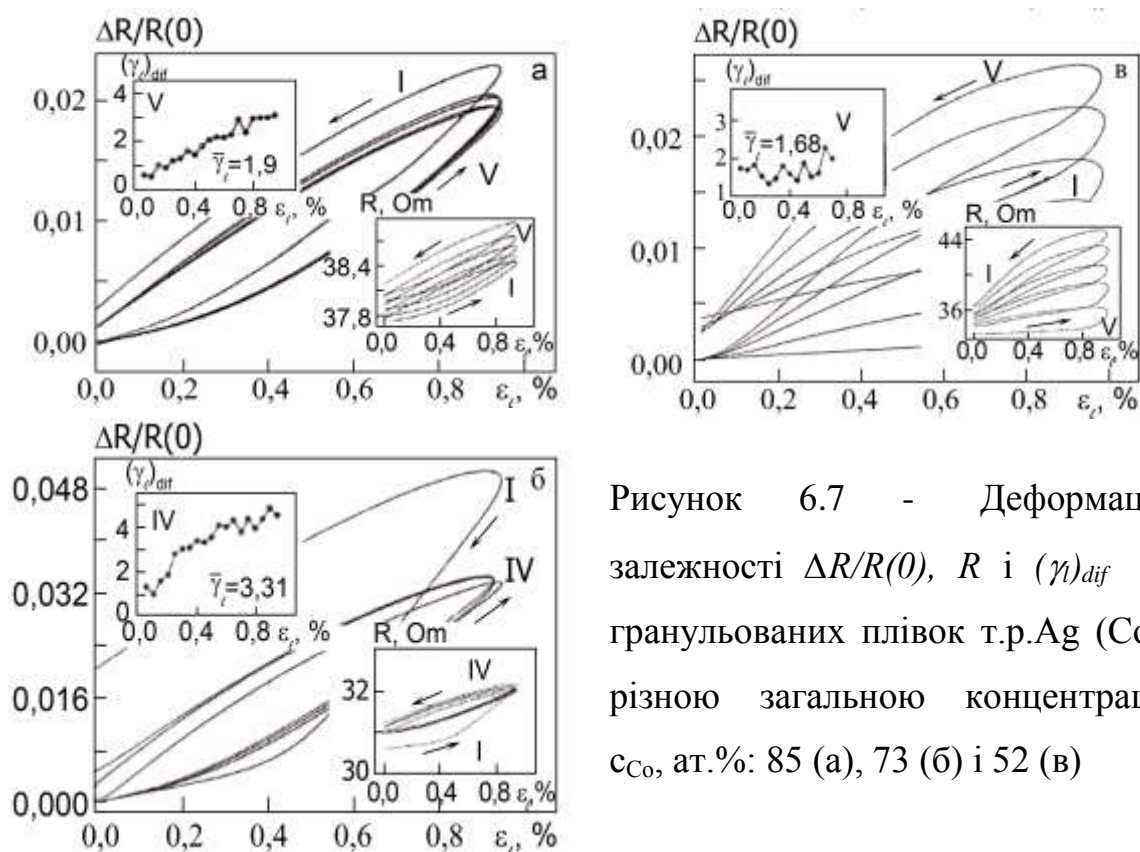


Рисунок 6.7 - Деформаційні залежності  $\Delta R/R(0)$ ,  $R$  і  $(\gamma)_{diff}$  для гранульованих плівок т.р.Аг (Со) із різною загальною концентрацією  $c_{Co}$ , ат.‰: 85 (а), 73 (б) і 52 (в)

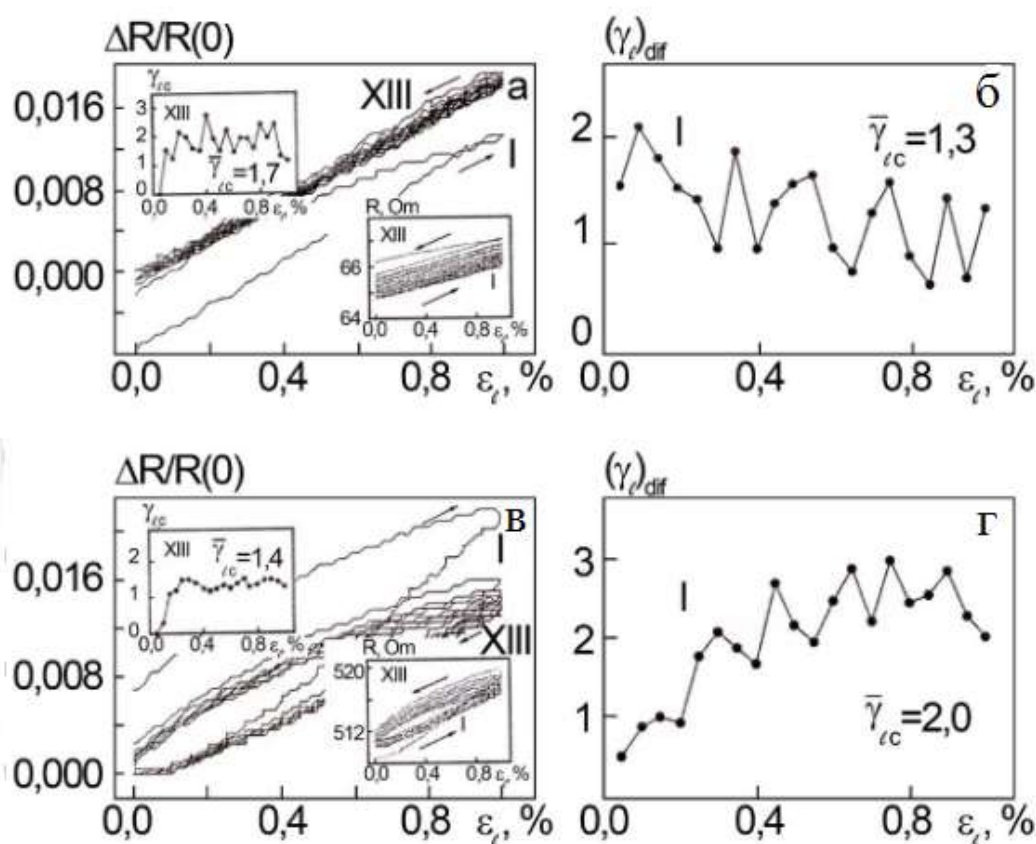


Рисунок 6.8 - Залежність  $\Delta R/R(0)$ ,  $R$  і  $(\gamma)_{diff}$  від  $\epsilon_l$  для плівки Аг(38)/П (а, б) та Со(70)/П (в, г)



внесок у величину КТ дає деформаційний коефіцієнт СДВП, який може приймати в окремих випадках величину близьку до нуля або, навіть, від'ємне значення.

Порівняння між собою величини  $(\gamma_l)_{\text{int}} = 1,90$  ( $c_{\text{Co}} = 85$  ат.%) і 3,31 ( $c_{\text{Co}} = 52$  ат.%) дозволяє стверджувати, що ефективна концентрація атомів Со (а як наслідок – концентрація гранул) виступає основним фактором впливу на деформаційну залежність СДВП. Якісно це можна пояснити, але для аналітичного опису необхідно користуватися поняттям про деформаційну залежність  $\lambda_0$ , коефіцієнтів  $p$  і  $r$  (більш детально у підрозділі 7.2).

## 7 ТЕОРЕТИЧНЕ УЗАГАЛЬНЕННЯ ДОСЛІДЖЕНЬ ТЕРМО- І ТЕНЗОРЕЗИСТИВНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ ГРАНУЛЬОВАНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ

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

Плівкова система на основі магнітної і немагнітної компонент моделюється як шарувата структура товщиною  $d$  на основі плівкового гранульованого т.р. (рис.7.1). Таким чином зразок представляє собою паралельне з'єднання  $N = \frac{d}{2r_0}$  окремих шарів. У свою чергу, окремий такий шар можна змодельювати (рис.7.2,а) як паралельне з'єднання  $n$  трубок струму (рис.7.2,б).

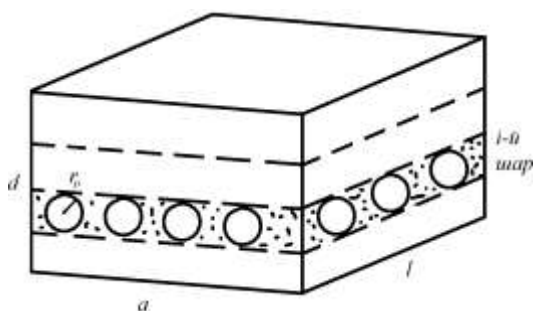


Рисунок 7.1 - Моделювання плівкового зразка гранульованого твердого розчину у вигляді шаруватої структури.  $l$ ,  $a$  і  $d$  – довжина, ширина і товщина зразка;  $r_0$  – середній радіус гранули

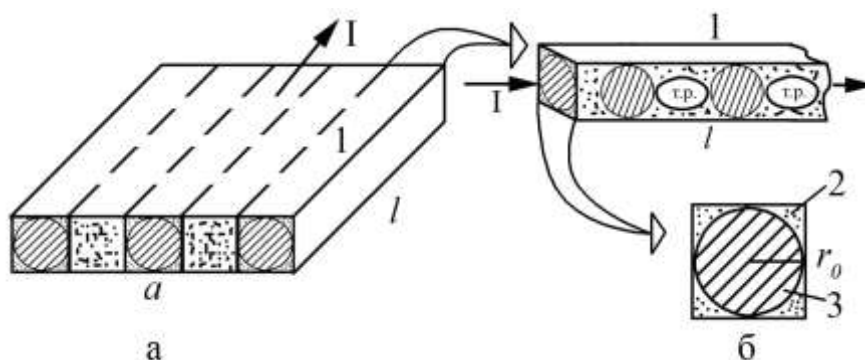


Рисунок 7.2 - Схематичне зображення окремого шару (а), трубки струму (1), її поперечного перерізу (б) із чотирма боковими (2) та центральним (3) стержнями.  $I$  – сила струму

В основі феноменологічної моделі електрофізичних властивостей гранульованих плівкових сплавів, запропонованої авторами [64], лежать наступні положення:

– плівковий зразок моделюється у вигляді шаруватої структури, окремий шар 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. 7.2 б);

– розрахунок опору гранули ( $R_2$ ) сферичної форми проводиться шляхом інтегрування елемента опору по об'єму гранули.

Нами раніше [64] було отримане наступне співвідношення для питомого опору шаруватої структури, представленої на рис.7.1 та 7.2:

$$\begin{aligned} \rho &= 4,65(2 + \alpha) \cdot \rho_{mp} \cdot \left( 4 + \frac{4,65\pi l \rho_{mp}}{r_0 n (\rho_2 + \alpha \rho_{mp})} \right)^{-1} = \\ &= A(2 + \alpha) \rho_{mp} \cdot \left( 4 + \frac{B \rho_{mp}}{\rho_2 + \alpha \rho_{mp}} \right)^{-1}, \end{aligned} \quad (7.1)$$

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

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

$\alpha = \frac{\Delta l_{\partial\partial}}{r_i}$  – т.зв. ступінь гранулярності зразка ( $\Delta l_{mp}$  – середня довжина

фрагменту т.р. в трубці струму);

$\rho_2$  і  $\rho_{mp}$  – питомий опір матеріалу гранул і фрагментів т.р.;

$\beta_2$  і  $\beta_{mp}$  – ТКО матеріалу гранул і фрагментів т.р. відповідно.

Після диференціювання співвідношення (7.1) по деформації можна отримати співвідношення для КТ, який виражається через питомий опір:

$$\gamma_l^p = \frac{d \ln \rho}{d \varepsilon_l} = \frac{d \ln(2 + \alpha)}{d \varepsilon_l} + \frac{d \ln \rho_{ss}}{d \varepsilon_l} - \frac{\rho_{ss} \gamma_l^{\rho_{ss}} (\rho_2 + \alpha \rho_{ss}) - \rho_{ss} \cdot \gamma_l^{\rho_2} \left( \frac{\partial \alpha}{\partial \varepsilon_l} \rho_{ss} + \alpha \cdot \gamma_l^{\rho_{ss}} \cdot \rho_{ss} \right) \cdot \left[ 4 + \frac{B \cdot \rho_{ss}}{(\rho_2 + \alpha \rho_{ss})} \right]^{-1}}{(\rho_2 + \alpha \rho_{ss})^2} \cdot B. \quad (7.2)$$

Співвідношення (7.2) дещо спрощується, якщо врахувати, що параметр  $\alpha$  не залежить від деформації, оскільки

$$\frac{d\alpha}{d\varepsilon_l} = \frac{d}{d\varepsilon_l} \left( \frac{\Delta l_{ss}}{r_0} \right) = \frac{1}{r_0} (-\mu_{ss} \cdot \Delta l_{ss} + \mu_2 \cdot \Delta l_{ss}) \cong 0, \quad (7.3)$$

де враховано, що коефіцієнти Пуассона для т. р. і матеріалу гранул приблизно однакові (відомо, що для металів  $\mu = 0,25 - 0,35$ ). У результаті формула (7.2) спрощується до вигляду:

$$\gamma_l^p = \gamma_l^{\rho_{mp}} - \frac{\rho_{ss} \gamma_l^{\rho_{ss}} \left[ \rho_2 + \alpha \rho_{ss} (1 - \gamma_l^{\rho_{ss}}) \right]}{(\rho_2 + \alpha \rho_{ss})^2 \left( 4 + \frac{B \cdot \rho_{ss}}{\rho_2 + \alpha \rho_{ss}} \right)}. \quad (7.4)$$

При аналізі (7.4) ми розглянемо три граничні випадки ( $\alpha \gg 1$ ,  $\alpha \cong 1$  та  $\alpha \ll 1$ ):

$$\begin{aligned} \gamma_l^p &\cong \gamma_l^{\rho_{ss}} \left( 1 - \frac{\alpha (1 - \gamma_l^{\rho_g})}{4\alpha + B} \right), \alpha \gg 1; \\ \gamma_l^p &\cong \gamma_l^{\rho_{ss}} \left( 1 - \frac{\rho_{ss} \rho_g}{\rho_g^2 (4 + B)} \right), \alpha \ll 1; \\ \gamma_l^p &\cong \gamma_l^{\rho_{ss}} \left( 1 - \frac{\rho_{ss} \left[ \rho_g + \rho_{ss} (1 - \gamma_l^{\rho_g}) \right]}{(\rho_g + \rho_{ss})^2 \left( 4 + \frac{B \rho_{ss}}{\rho_g + \rho_{ss}} \right)} \right), \alpha \cong 1, \end{aligned} \quad (7.5)$$

Апробація даної феноменологічної моделі була проведена для плівкових зразків на основі Co та Ag, в яких після термовідпалювання до 700 К і вище стабілізується т. р. з елементами гранульованого стану. Приклад розрахунків КТ для плівкових систем на основі Ag і Co представлений в табл. 7.1. Відмітимо, що величину  $\gamma_l^{pss}$  розраховували на основі співвідношення

$$\gamma_l^{pss} = \frac{\gamma_{l1}^p}{1 + c_2 \rho_2 / c_1 \rho_1} + \frac{\gamma_{l2}^p}{1 + c_1 \rho_1 / c_2 \rho_2}, \quad (7.6)$$

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

Таблиця 7.1 - Результати розрахунків за феноменологічною моделлю (7.4) і (7.6)

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

Як витікає із розрахунків, можна зробити висновок, що основний внесок у загальну величину КТ дає т. р. як матриця гранульованої системи. Це можна якісно пояснити, виходячи із концепції та уявлень про балістичне перенесення заряду у наногранулах, оскільки розмір гранул завжди буде менше  $\lambda_0$ , тобто  $r_0/\lambda_0 < 1$ . Як наслідок всередині гранули реалізується балістичний механізм електроперенесення, і тому деформаційний коефіцієнт  $\lambda_0$ , який дає основний внесок у величину КТ,  $\eta_{\lambda_0 l} = -\frac{1}{\lambda_0} \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_l} \cong 0$ . Поряд із цим в області локалізації

т. р. реалізується звичайний механізм електропровідності, який дає основний внесок у загальну величину КТ. Якщо звернутися до літературних даних стосовно тензоефекту у плівкових системах із різною концентрацією феромагнітної компоненти (див., наприклад, [94]), то можна знайти підтвердження наших висновків. Зокрема, у плівковій системі Fe(4)/Pt(18)/П (концентрація  $c_{\text{Fe}} = 22$  ат. %), в якій утворюється розбавлений т. р. із можливою стабілізацією елементів гранульованого стану (тобто  $\alpha \gg 1$ ), величина КТ в області пружної деформації дорівнює  $\gamma_i^p \cong 2,5$  одиниці. При переході до більшої концентрації  $c_{\text{Fe}} \cong 61$  ат. % (система Fe(22)/Pt(18)/П) величина  $\gamma_i^p$  не змінюється, хоча кількість атомів Fe можуть забезпечити умову  $\alpha \geq 1$ . Навіть при концентрації  $c_{\text{Fe}} \cong 71$  ат. %, коли можна говорити про виконання умови  $\alpha \ll 1$ , величина  $\gamma_i^p$  збільшується лише на 0,7 одиниці.

Подібний висновок якісно витікає із даних, представлених у табл. 7.1, оскільки розрахункові дані для  $\gamma_i^{\text{pss}}$  і  $\gamma_i^p$  відрізняються не більше, ніж на 18%. Але проблема полягає в тому, що наші висновки ґрунтуються на наближених результатах розрахунків, але експериментально визначити  $\gamma_i^{\text{pss}}$  і  $\gamma_i^p$  неможливо.

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

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

та означення для  $\gamma_1$

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

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

опору сплава

$$\rho = \rho_1 c_1 + \rho_2 c_2, \quad (7.7)$$

отримуємо таке співвідношення для біпластини:

$$\begin{aligned} \gamma_i^\rho &= \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{d_1 \mu_1 + d_2 \mu_2}{d_1 + d_2} - \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 d_2 - \rho_1 d_2 \mu_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 d_1 - \rho_2 d_1 \mu_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1} \cong \\ &\cong \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 d_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 d_1}{\rho_1 d_2 + \rho_2 d_1}, \end{aligned} \quad (7.8)$$

де  $\mu_i$  – коефіцієнт Пуассона  $i$ -го шару,

застосовуючи такі позначення:

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

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

$$\begin{aligned} \gamma_i^\rho &= \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 c_1 + \rho_1 c_1 \gamma_{i1}^C + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 c_2 + \rho_2 c_2 \gamma_{i2}^C}{c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2} \cong \\ &\cong \frac{\gamma_{i1}^\rho \rho_1 c_1 + \gamma_{i2}^\rho \rho_2 c_2}{c_1 \rho_1 + c_2 \rho_2} = \frac{\gamma_{i1}^\rho}{1 + \frac{c_2 \rho_2}{c_1 \rho_1}} + \frac{\gamma_{i2}^\rho}{1 + \frac{c_1 \rho_1}{c_2 \rho_2}}, \end{aligned} \quad (7.9)$$

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

По аналогії із (7.8) і (7.9) отримуємо співвідношення для  $\gamma_i^\rho$  для тришарової плівкової системи, де другим шаром виступає шар т.р. біля інтерфейсу (рис.7.3):

$$\begin{aligned} \gamma_i^\rho &\cong \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{(d_1 - d_1'')(\gamma_{ic}^\rho \rho_{ss} \rho_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_{ss} \rho_2) + (d_2 - d_2'')(\gamma_{ic}^\rho \rho_{ss} \rho_1 + \gamma_{i1}^\rho \rho_{ss} \rho_1)}{(d_1 - d_1'') \rho_{ss} \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_{ss} \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2} + \\ &+ \frac{(d_1'' + d_2'')(\gamma_{i1}^\rho \rho_1 \rho_2 + \gamma_{i2}^\rho \rho_1 \rho_2)}{(d_1 - d_1'') \rho_{ss} \rho_2 + (d_2 - d_2'') \rho_{ss} \rho_1 + (d_1'' + d_2'') \rho_1 \rho_2} = \\ &= \gamma_{i1}^\rho + \gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i2}^\rho - \frac{A_1(\gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i2}^\rho) + A_2(\gamma_{ic}^\rho + \gamma_{i1}^\rho) + A_3(\gamma_{i1}^\rho + \gamma_{i2}^\rho)}{A_1 + A_2 + A_3}, \end{aligned} \quad (7.10)$$

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

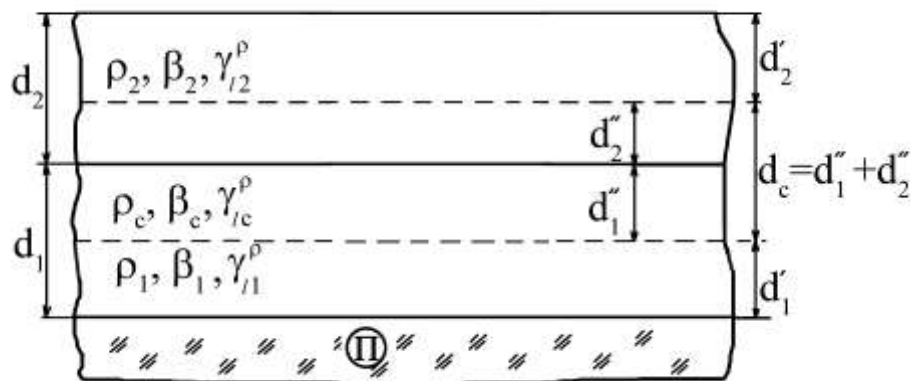


Рисунок 7.3 - Геометрична модель двошарової плівкової системи із проміжним шаром т.р. біля інтерфейсу

Співвідношення (7.8) – (7.10) дозволяють якісно аналізувати тензоефект у гранульованих плівках.

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

У цьому підрозділі представлена узагальнена напівфеноменологічна модель для фізичних властивості плівкових матеріалів, в якій враховується залежність від зовнішніх фізичних полів таких параметрів електроперенесення як середня довжина вільного пробігу ( $\lambda_0$ ), коефіцієнт дзеркальності ( $\rho$ ), проходження межі зерен ( $\tau$ ) та інтерфейсів ( $Q_{ij}$ ). Відмітимо, що частинні випадки цієї моделі стосовно ТКО і КТ були розглянуті раніше [94], [95]. Суть нашого узагальнення полягає в тому, що ми вводимо узагальнюючий параметр (позначимо його  $V$ ), який відповідає температурі  $T$  (при аналізі ТКО), деформації  $\varepsilon_l$  (при аналізі тензоефекту) або магнітному полю  $H$  (у випадку магнітоопору). Кількісною характеристикою залежності вказаних параметрів електроперенесення від зовнішніх параметрів можуть бути такі температурні, деформаційні або магнітні коефіцієнти:



$$\beta_B^K = \frac{d \ln R}{dB}, \beta_{0i}^K = -\frac{d \ln \lambda_{0i}}{dB}, \beta_{pi}^K = -\frac{d \ln p_i}{dB}, \beta_{ri}^K = -\frac{d \ln r_i}{dB} \text{ та } \beta_{Qij} = -\frac{d \ln Q_{ij}}{dB}, \quad (7.11)$$

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

У випадку тришарової плівкової системи електричний опір виражається співвідношенням:

$$\frac{1}{R} = \frac{a}{l} (d_1 \sigma_{01} F_1 + d_2 \sigma_{02} F_2 + d_3 \sigma_{03} F_3), \quad (7.12)$$

де  $a, l$  – ширина і довжина плівкової системи;

$\sigma_{0i}$  і  $\sigma_i$  – питома провідність масивного і плівкового матеріалу;

$F_i \equiv \frac{\sigma_i}{\sigma_{0i}}$  – функція Фукса ( $\sigma_i$  – питома провідність плівки).

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

$$\beta_B^K \equiv \frac{d \ln R^K}{dB} = A_1 \left( -\alpha_{B1}^K - \frac{\partial \ln \sigma_{01}^K}{\partial B} - \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial B} \right) + \dots + A_3 \left( -\alpha_{B3}^K - \frac{\partial \ln \sigma_{03}^K}{\partial B} - \frac{\partial \ln F_3^K}{\partial B} \right), \quad (7.13)$$

де  $A_i = \frac{d_i \sigma_{0i} F_i}{d_1 \sigma_{01} F_1 + d_2 \sigma_{02} F_2 + d_3 \sigma_{03} F_3}$ ;

$\alpha_{Bi}^K = \frac{d \ln d_i}{dB} \cong 0$  – магнітострикційний коефіцієнт;

$-\frac{\partial \ln \sigma_{0i}^K}{\partial B} = \beta_{0Bi}^K$ , де індекс «0» означає масивний зразок.

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

$$\begin{aligned}
\frac{d \ln F_1^K}{dB} &= \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{d \ln k_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{d \ln m_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_i}{\partial \ln p_i} \frac{d \ln p_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln k_2} \frac{d \ln k_2}{dB} \\
&+ \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_i}{\partial \ln r_i} \frac{d \ln r_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{\partial \ln m_i}{\partial \ln r_i} \frac{d \ln r_1}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln m_2} \frac{d \ln m_2}{dB} + \\
&+ \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln m_1} \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln m_2} \frac{\partial \ln m_2}{\partial \ln r_2} \frac{d \ln r_2}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln Q_{12}} \frac{d \ln Q_{12}}{dB} + \frac{\partial \ln F_1^K}{\partial \ln k_1} \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln k_2} \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln Q_{12}} \frac{d \ln Q_{12}}{dB},
\end{aligned} \tag{7.14}$$

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

Після урахування співвідношень:

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

рівняння (7.14) приймає такий вигляд:

$$\begin{aligned}
\beta_B^K &= A_1 \left\{ \beta_{0B1}^K - \left( 1 - \frac{\beta_{B1}^K}{\beta_{0B1}^K} \right) \left[ 2\beta_{0B1}^K + \beta_{p1}^K \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln p_1} + \beta_{r1}^K \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln r_1} + \beta_{Q12}^K \frac{\partial \ln k_1}{\partial \ln Q_{12}} \right] + \right. \\
&+ \left. \left( 2\beta_{0B2}^K + \beta_{p2}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln p_2} + \beta_{r2}^K \cdot \frac{\partial \ln m_2}{\partial \ln r_2} + \beta_{Q21}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln Q_{21}} \right) \cdot \frac{\beta_{0B1}^K}{\beta_{0B2}^K} \right\} + \dots + \\
&A_3 \left\{ \beta_{0B1}^K - \left( 1 - \frac{\beta_{B3}^K}{\beta_{0B3}^K} \right) \left[ 2\beta_{0B3}^K + \beta_{p3}^K \frac{\partial \ln k_3}{\partial \ln p_3} + \beta_{r3}^K \frac{\partial \ln m_3}{\partial \ln r_3} + \beta_{Q32}^K \frac{\partial \ln k_3}{\partial \ln Q_{32}} \right] + \right. \\
&+ \left. \left( 2\beta_{0B2}^K + \beta_{p2}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln p_2} + \beta_{r2}^K \cdot \frac{\partial \ln m_2}{\partial \ln r_2} + \beta_{Q23}^K \cdot \frac{\partial \ln k_2}{\partial \ln Q_{23}} \right) \cdot \frac{\beta_{0B3}^K}{\beta_{0B2}^K} \right\},
\end{aligned} \tag{7.15}$$

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

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

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

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

Завершуючи розгляд напівфеноменологічної моделі, відмітимо, що, в принципі, вона правильно описує електронні процеси розсіювання на зовнішніх поверхнях плівкових зразків, на межах зерен і інтерфейсах, про що свідчать результати апробації частинних випадків моделі [94], [95]. У той же час необхідно констатувати, що запропонована узагальнююча модель ніяким чином не враховує процесів розсіювання електронів на поверхні гранул і на їх магнітних моментах та магнітних моментах можливих доменів твердих розчинів. Ураховуючи попередній висновок про незначну роль розсіювання електронів на гранулах в тензоефекті, можна сподіватись на якісну відповідність запропонованої моделі експериментальній ситуації.

### 7.3 Прикладні аспекти експериментальних досліджень

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

режимі тунелювання і наявність двох піків при 2,2 еВ та 1,45 еВ (новий пік, який не обговорювалося в літературі раніше) в режимі польовий емісії (рис.7.4). Оптичне випромінювання виникає через непружне тунелювання деяких електронів між зондом і зразком при напрузі у декілька вольт обох полярностей або електронного бомбардування зразка при польовій емісії електронів. Це випромінювання світла характеризується спектром, який обумовлений, головним чином, міжзонними переходами, в тому числі і через поверхневі стани, і розпаду плазмонів. У той же час плазмова частота визначається типом матеріалу наночастинок, їх розміром і формою, відстанню між ними та ін.

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

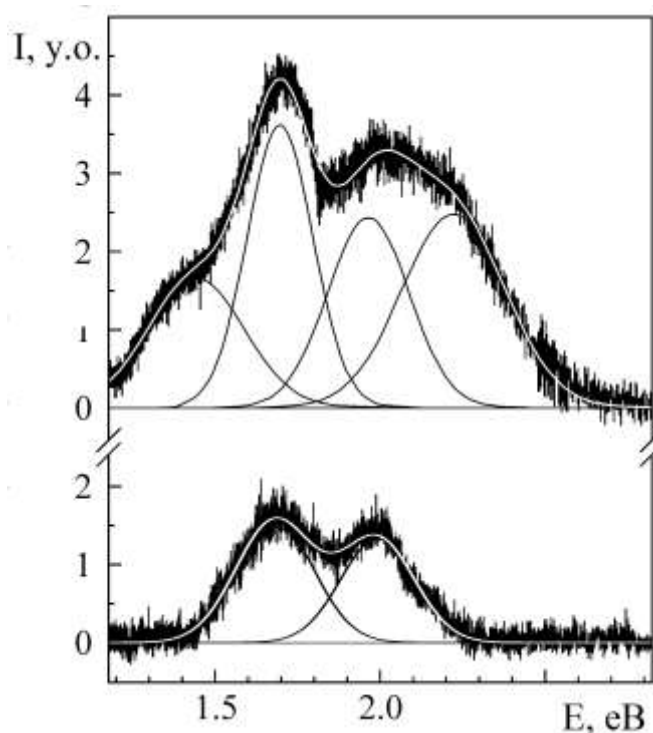


Рисунок 7.4 - Спектр емісії фотонів наночастинки Au (напруга - 10 В, сила наноструму 10 нА)

Таблиця 7.2 - Робочі параметри чутливого елемента плівкового сенсора  
магнітного поля

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

Таблиця 7.3 - Величина АМО в чутливому елементі датчика магнітного поля при кімнатній температурі

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

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

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

У багатошарових плівках, які можна використовувати як чутливий елемент сенсора магнітного поля, реалізується гранульований стан і, як наслідок, спін-залежне розсіювання електронів, що обумовлює незалежність опору чутливого елемента від орієнтації зовнішнього магнітного поля, та його висока термічна стабільність. Тришарова плівка формується із магнітних (Fe або Co) і немагнітних (Cu, Pd, Pt або Ag) шарів металів, які поперемінно чергуються і мають товщину від 5 до 30 нм. Робочі характеристики чутливих елементів у вигляді плівки із елементами гранульованого стану представлені у табл. 7.2 і 7.3.

Відмітимо, що у всіх наведених у табл. 7.2 і 7.3 плівкових системах стабілізується гранульований стан по усій товщині чутливого елемента. Крім того, вкажемо, що раніше нами був запропонований подібний чутливий елемент тензодатчика.

**ЧАСТИНА 3**  
**МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ТА МАГНІТООПТИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ**  
**ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ ТВЕРДИХ РОЗЧИНІВ**  
**НА ОСНОВІ Co, Fe I Ag АБО Au**

**8 МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ МУЛЬТИШАРІВ НА ОСНОВІ**  
**Co АБО Fe ТА Ag АБО Au**

**8.1 Методика експериментальних досліджень**

Вимірювання магніторезистивних властивостей проводилося при кімнатній температурі в трьох геометріях: поздовжній – магнітне поле паралельне струму і підкладці ( $B \parallel j, \Pi$ ), поперечній – поле перпендикулярно струму і паралельне підкладці ( $j \perp B \parallel \Pi$ ) та перпендикулярній – лінії магнітної індукції перпендикулярні до струму і підкладки ( $B \perp j, \Pi$ ), де  $B$  – індукція магнітного поля,  $j$  – вектор густини електричного струму;  $\Pi$  – підкладка. Польові залежності опору були побудовані в автоматизованому режимі за чотириточковою схемою: на зовнішні контакти подавався постійний електричний струм величиною 1 мА, напруга знімалася із внутрішніх контактів вольтметром HP-34401A, величина індукції магнітного поля між котушками індуктивності контролювалася датчиком Холла магнітометру НТМ-11S і становила величину до 1,2 Тл. Плівкові зразки на столику із немагнітного матеріалу розміщувався між електромагнітами у вакуумній камері, в якій попередній вакуум створювався форнасосом Alcatel SD. Результати вимірювання досліджуваних величин передавалися по інтерфейсу GPIB-RS-232 з приладів на комп'ютер і оброблялися з використанням програмного забезпечення, що було створене в середовищі LabView. Блок-схема автоматизованого комплексу наведена на рис.8.1.

Розрахунок магнітоопору проводився за формулою:

$$MO = \Delta R / R(0) = (R(B) - R(0)) / R(0),$$

де  $R(B)$  і  $R(0)$  – опір зразка у зовнішньому магнітному полі та при його відсутності.

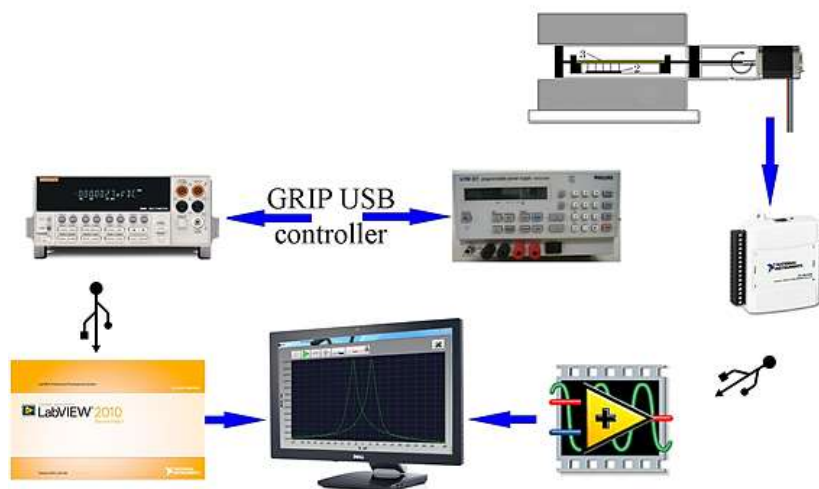


Рисунок 8.1 – Блок-схема автоматизованого комплексу для вимірювання магніторезистивних властивостей

## 8.2 Магніторезистивні властивості багат шарових плівок на основі Co або Fe та Ag або Au

У роботі представлені результати досліджень магніторезистивних властивостей плівкових матеріалів на основі Ag і Fe або Co та з різною концентрацією немагнітної компоненти в одному технологічному циклі методом пошарової або одночасної конденсації з наступною термообробкою в інтервалі температур 300-900К. Для зменшення або уникнення впливу матеріалу підкладки на структуру плівкових матеріалів як підкладки використовувалися пластини Si із природним шаром оксиду. Питомий опір зразків складав величину  $(1-3) \cdot 10^{-7}$  Ом·м, що дає підстави стверджувати про достатню чистоту отриманих зразків і про мінімальний вплив домішкових атомів на магніторезистивні властивості.

Вимірювання МО у плівках, які у вихідному стані представляли тришарову систему  $Fe(3)/Ag(d)/Fe(3)/\Pi$ , ( $d \cong 1, 3$  або  $5$  нм), вказує на те, що при зміні індукції магнітного поля від  $-0,45$  до  $0,45$  Тл величина МО має найбільші значення у поздовжній геометрії і дорівнює  $0,30-0,45$  % і  $0,12-0,28$  %, відповідно. Як приклад на



рис. 8.2 наведені польові залежності МО для плівок Ag (1, 3, 5 нм)/Fe(3)/П. Відпалювання зразків до  $T_B = 800$  К призводить до незначного (на 2-8 %) зростання величини МО у трьох геометріях вимірювання.

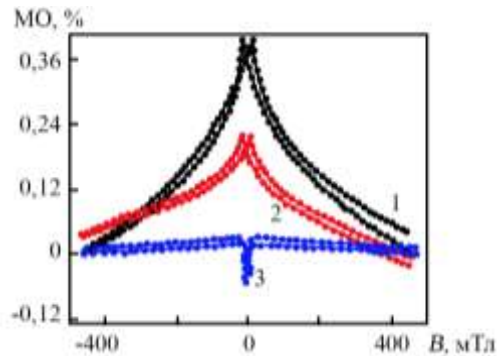


Рисунок 8.2 – Польові залежності МО для тришарових плівкових систем у вихідному стану: 1 – Fe(3)/Ag(5)/Fe(3)/П; 2 – Fe(3)/Ag(3)/Fe(3)/П; 3 – Fe(3)/Ag(1)/Fe(3)/П при поздовжній геометрії вимірювання [15]

У тришарових плівкових системах Co (5-10 нм)/ Ag(10-20 нм)/Co(5-10 нм)/П спостерігаються ознаки ГМО на польових залежностях МО у трьох геометріях та максимальні величини  $МО = 0,5-0,8$  % при поздовжній геометрії вимірювання. Установлено, що у плівкових гранульованих славах на основі Ag і Co величина  $МО = 0,4-0,5$  % (при загальній концентрації  $c_{Co} = 38$  ат. %), а при збільшенні концентрації  $c_{Co}$  спочатку зростає до величин 1,5-1,8 % (при  $c_{Co} = 60$  ат. %), а потім зменшується до 0,4-0,5 % (при  $c_{Co} = 70$  ат. %) [111] – [112].

На рис. 8.3 представлені залежності МО від індукції магнітного поля для плівкових систем Co(8)/Ag(4)/Co(10)/П і Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П у вихідному стані.

Для систем на основі Ag і Fe отримана [108] аналогічна за характером концентраційна залежність, але з меншою амплітудою ГМО (до 5 %).

Оскільки умови експериментальних досліджень у випадку рис. 8.3 а і 8.3 б аналогічні, то різницю у величині МО можна пояснити феромагнітною взаємодією між шарами Co при  $d_{Ag} \cong 2$  нм або антиферомагнітною взаємодією  $d_{Ag} \cong 4$  нм, що обумовить ефект СЗРЕ.

Плівкові системи Au/Co(30)/Fe(30)/П на основі Co, Au і Fe, які були вирощені орієнтовано на підкладці MgO(100) та на аморфній підкладці SiO<sub>2</sub>/Si, мають відмінний структурний стан та різну інтенсивність протікання дифузійних

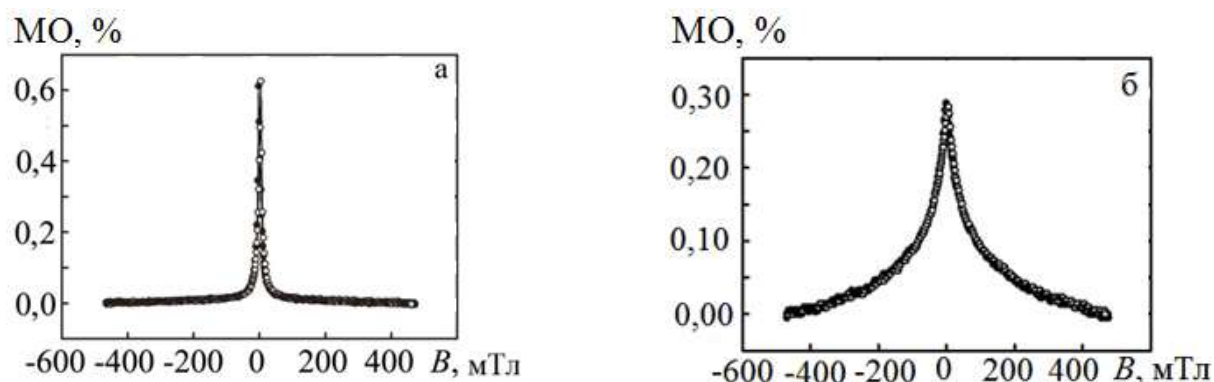


Рисунок 8.3 – Залежність МО від прикладеного магнітного поля для плівкових систем Co(8)/Ag(4)/Co(10)/П (а) та Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П (б) у вихідному стані при поздовжній геометрії вимірювання

процесів в них. Це істотно впливає на їх магнітні властивості. Наприклад, дослідження МО показали, що система, яка вирощена епітаксіально, проявляє анізотропію при різних кутах повороту зразка ( $\phi$ ) відносно силових ліній магнітного поля. Подібний ефект спостерігається під час переходу від перпендикулярної до поздовжньої або поперечної геометрії вимірювання МО (рис. 8.4). Система Au(3)/Co(30)/Fe(30)/SiO<sub>2</sub>/Si має майже незмінні залежності МО незалежно від повороту зразка (рис. 8.4 в, г). Після відпалювання зразків до  $T_c \cong 570$  К, величина МО системи, що вирощена епітаксіально, зменшується. Особливо це помітно при переході від перпендикулярної до поздовжньої геометрії вимірювання (рис. 8.4 б, г, е, ж). У системі, яка конденсувалась на SiO<sub>2</sub>/Si, навпаки, величина МО змінюється несуттєво (рис. 8.4 е, ж). Але, після відпалювання до  $T_c \cong 770$  К, магнітоопір зменшується у декілька разів для усіх геометрій вимірювання (рис. 8.5). Описані особливості поведінки МО при термообробці можна пояснити утворенням обмежених т.р. Au(Co) і Au(Fe) із недосконалими елементами гранульованого стану.

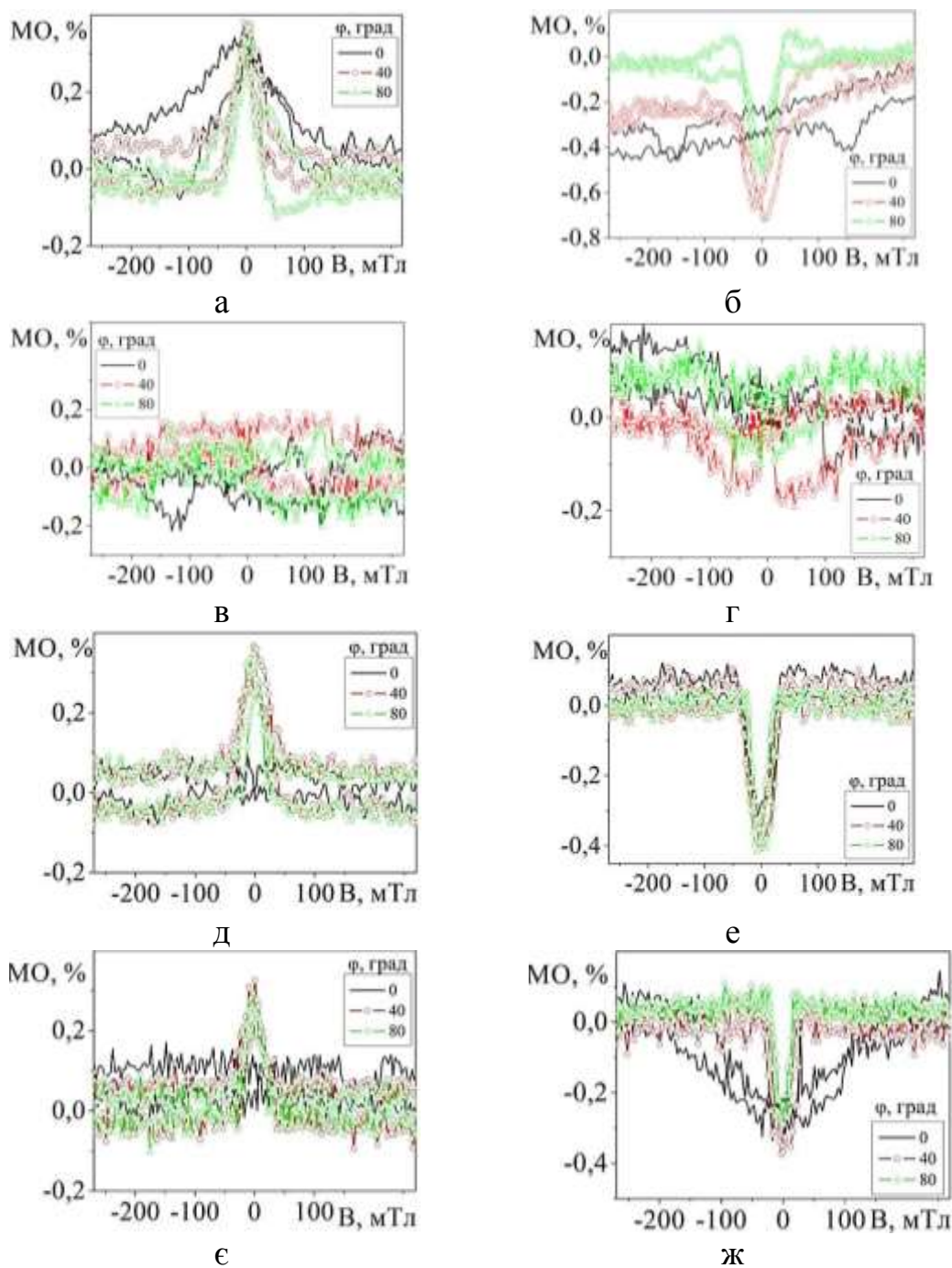


Рисунок 8.4 – Залежності МО від кута повороту зразка для систем Au(3)/Co(30)/Fe(30)/MgO (а-г) та Au(3)/Co(30)/Fe(30)/SiO<sub>2</sub>/Si (д-ж) при переході від перпендикулярної до поперечної (а,в,д,е) та від перпендикулярної до поздовжньої (б,г,е,ж) геометрії вимірювання при  $T_v \cong 300$  К (а, б, д, е) та  $T_v \cong 570$  К (в, г, е, ж)

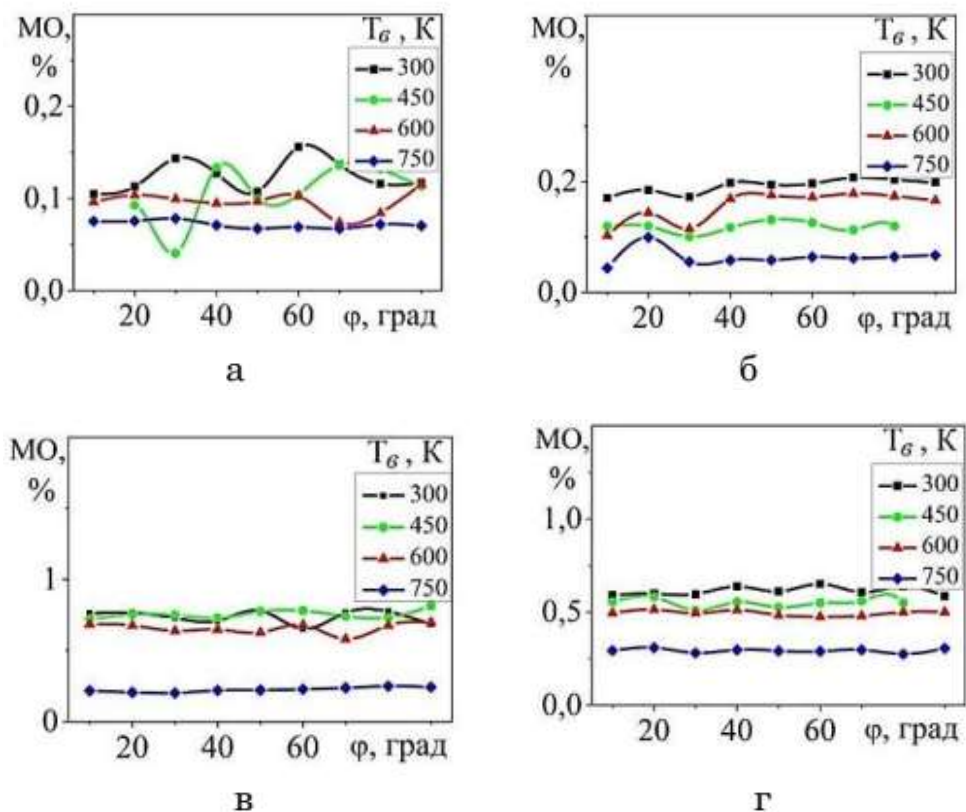


Рисунок 8.5 – Залежності МО від  $T_{\sigma}$  для плівкових систем Au(3)/Co(3)/Au(6)/Fe(20)/SiO<sub>2</sub>/Si (а), Au(3)/Fe(20)/Au(6)/Co(3)/SiO<sub>2</sub>/Si (б), Au(3)/Fe(3)/Au(6)/Co(20)/SiO<sub>2</sub>/Si (в) та Au(3)/Co(20)/Au(6)/Fe(3) /SiO<sub>2</sub>/Si (г) при переході від перпендикулярної до поперечної геометрії вимірювання

### 8.3 Магніторезистивні властивості гранульованих псевдосплавів на основі Co або Fe та Ag або Au

Нами установлені умови утворення твердих розчинів (т. р.) Ag(Co) або Ag(Fe) і виділенняв них наногранул Fe або Co (рис.8.6) у плівкових матеріалах, сформованих одночасною або пошаровою конденсацією із наступною термообробкою до  $T_{\text{в}} \cong 900$  К.

Необхідно відмітити, що у невідпалених плівках на основі Ag і Fe, які були сформовані методом одночасної конденсації двох металів, спостерігається польова залежність МО з досить високими значеннями (до 2,5 %) при кімнатній температурі вимірювання (рис. 8.7), що дозволяє зробити висновок про

гранульований стан досліджуваних зразків. Нами [110] вставлено, що плівкові системи (Ag + Fe)/П, отримані методом магнетронного розпилення (середній розмір гранул  $\alpha$ -Fe близький до 10 нм), мають найвищі значення МО у порівнянні із зразками, які сформовані іншими методами.

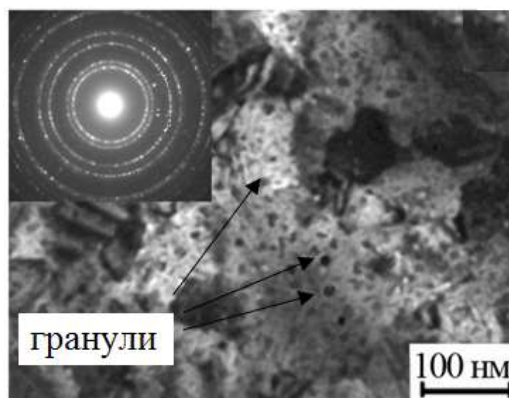


Рисунок 8.6 – Мікроструктура та відповідна їй електронограма від гранульованого т.р. Ag(Co), сформованого на основі двошарової плівкової системи Ag(40)/Co(30)/П

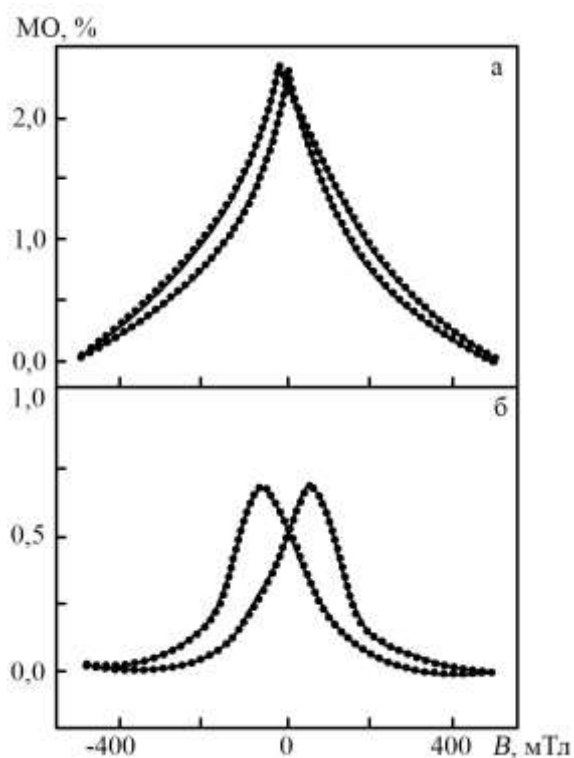
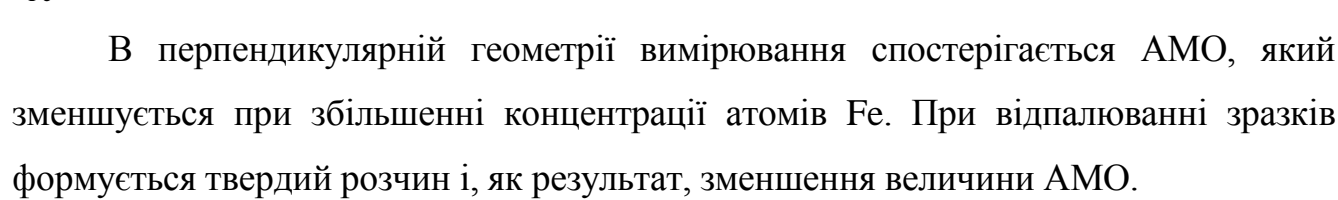


Рисунок 8.7 – Польова залежність МО для невідпаленої (а) і відпаленої до  $T_{\text{в}} = 750 \text{ K}$  (б) плівкової системи (Fe + Ag)/П при  $c_{\text{Ag}} = 70 \text{ ат. \%}$  у поздовжній геометрії вимірювання МО

Цей висновок до великої міри підтверджується даними роботи [111], на думку авторів якої максимальне значення МО фіксується у зразках, які мають велику кількість гранул  $\alpha$ -Fe розміром у декілька нм, локалізованих у неупорядкованому т.р. атомів Fe у матриці Ag. Зменшення величини МО після відпалювання можна пов'язати із збільшенням середнього розміру гранул  $\alpha$ -Fe, що призводить до зменшення ефективності СЗРЕ.

Рис. 8.8 ілюструє експериментальну залежність магнітоопору для плівок (Fe+Au)/П в концентраційному інтервалі атомів Fe від 30 до 60 ат.%. Було отримано, що максимальна величина МО = 0,3% спостерігається у плівках з  $c_{\text{Fe}} = 35$  ат.%.  


В перпендикулярній геометрії вимірювання спостерігається АМО, який зменшується при збільшенні концентрації атомів Fe. При відпалюванні зразків формується твердий розчин і, як результат, зменшення величини АМО.

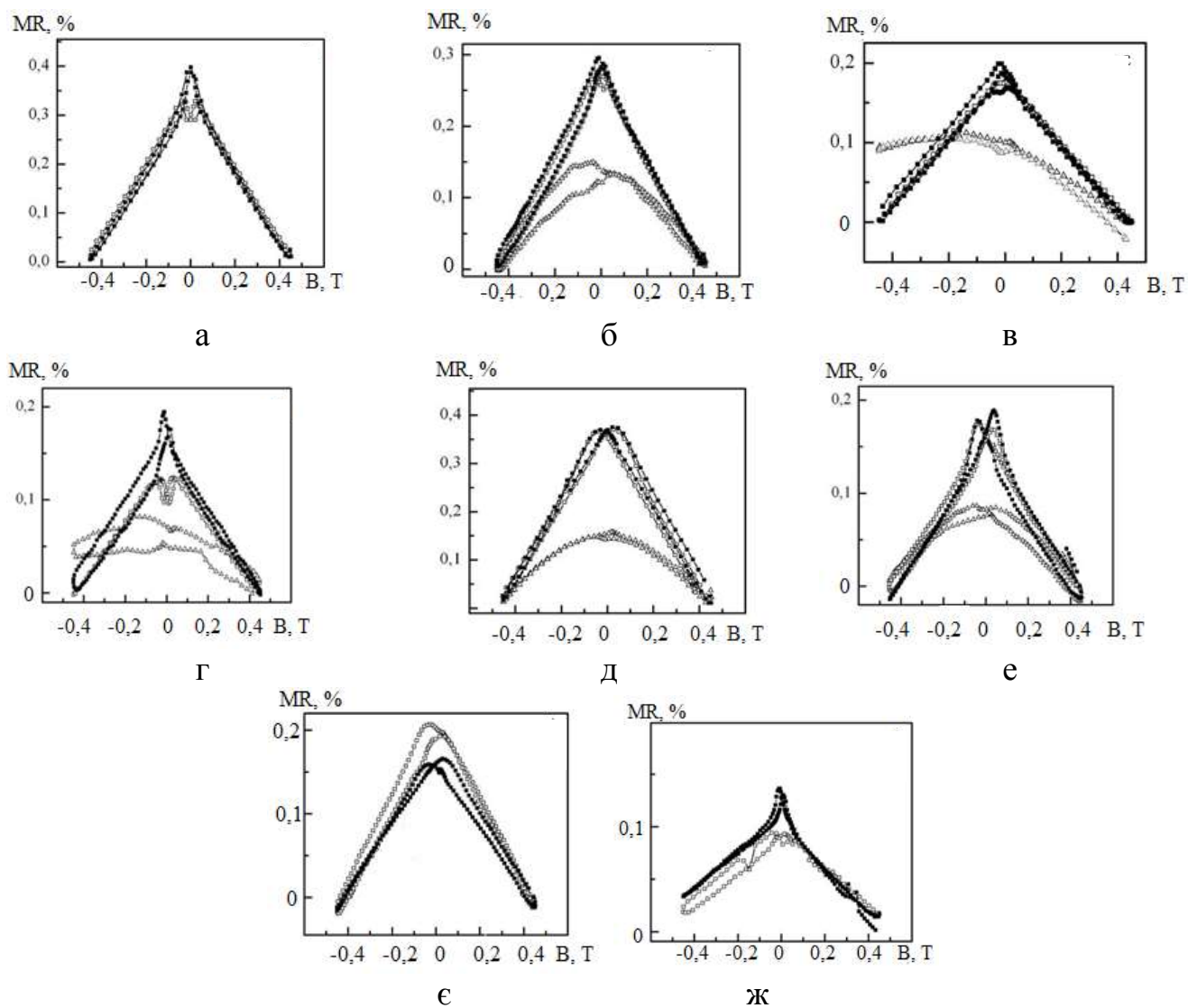


Рисунок 8.8 – Польова залежність МО для свіжесконденсованих (а-г) та відпалених до 550 К (д-ж) зразків (Fe+Au)/П.  $c_{\text{Fe}}$ , ат.:%: 30 (а, д); 35(б, е), 46 (в, е) and 60 (г, ж). Загальна товщина – 30 нм

## 9 МАГНІТООПТИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ПЛІВКОВИХ ГРАНУЛЬОВАНИХ СПЛАВІВ

### 9.1 Методика експериментальних досліджень

Інтерес дослідників до вивчення магнітооптичних властивостей плівкових матеріалів пов'язана, в першу чергу, з їх можливим застосуванням для реалізації високощільного запису інформації, що є актуальною проблемою інформаційних технологій. Реєстрація інформації магнітними, оптичними і гібридним методами базується на використанні нанорозмірних матеріалів. Багатошарові плівки і гранульовані плівкові сплави знаходять широке застосування в магнітоелектронних пристроях. Значна увага в технологічному аспекті приділена можливості контролю як величини магніторезистивного ефекту в процесі формування чутливих елементів сенсорів різного функціонального призначення, так і безконтактного оптичного контролю величини магнітоопору. Однією із методик досліджень магнітних властивостей плівок є магнітооптичний ефект Кера, який застосовується при дослідженнях електронної структури феромагнітних металів і сплавів, доменної структури феромагнетиків, при вивченні структури поверхневого шару полірованого металу, в магнітно-силових мікроскопах для вивчення магнітної топології зразків та оптоволоконних технологіях для електричної модуляції оптичних сигналів. У нашій попередній роботі [112] представлені результати аналізу літературних і власних результатів стосовно фазового складу, електрофізичних і магніторезистивних властивостей гранульованих плівкових сплавів на основі Co і Ag або Au. Зроблено висновок, що величина гігантського магнітоопору повністю визначається температурою вимірювання та досконалістю гранульованого стану.

Криві намагнічування вимірювалися методом магніто-оптичного ефекту Кера (МОКЕ) при поздовжній та перпендикулярній орієнтації магнітного поля (намагніченості плівкової системи) при повороті зразка на кут  $\alpha$  (рис. 9.1). Дана



методика дала змогу побудувати в полярних координатах залежності коерцитивної сили ( $B_c$ ) від кута повороту зразка та визначити зміни МО при різних кутах між напрямом протікання струму в плівці та силовими лініями прикладеного магнітного поля. Плівкові зразки формувалися у вигляді тришарової системи Au(3)/Co(20)/Fe(70)/П та чотиришарових систем Au(3)/Co(3)/Au(6)/Fe(20)/П, Au(3)/Fe(20)/Au(6)/Co(3)/П, Au(3)/Fe(3)/Au(6)/Co(20)/П та Au(3)/Co(20)/Au(6)/Fe(3)/П у надвисокому вакуумі (тиск залишкової атмосфери  $7 \cdot 10^{-8}$  Па) із швидкістю конденсації один моноатомний шар за хвилину. Надалі П відповідає (100)MgO або SiO<sub>2</sub>/Si у випадку тришарової або SiO<sub>2</sub>/Si у випадку чотиришарової системи. Термовідпалювання до 840К здійснювалося у вакуумі  $10^{-7}$  Па протягом 60 хвилин.

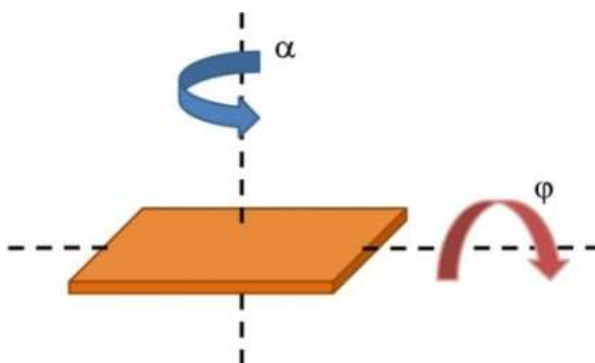


Рисунок 9.1 – Схематичне зображення кутів повороту зразка при вимірюванні МО (кут  $\varphi$ ) та МОКЕ (кут  $\alpha$ )

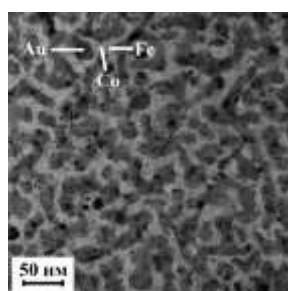
Електронно-мікроскопічні і електрографічні дослідження кристалічної структури проводилися за допомогою електронного мікроскопа ПЕМ-125К. У таблиці 9.1 наведений приклад розшифрування електроннограми від чотиришарового зразка Au(3)/Fe(20)/Au(3)/Co(3)/П.

Хімічний склад зразків досліджувався методом EDAX (растровий мікроскоп JSM-6400). Оскільки взаємна розчинність атомів Co і Fe у решітці Au незначна, то обмежені тверді розчини (т.р.) Au(Co) або Au(Fe) можна трактувати як

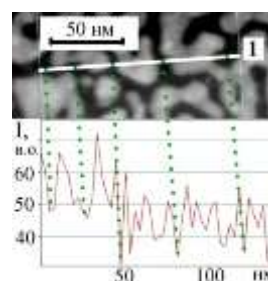
псевдосплави із елементами гранульованого стану. Приклад EDAX-спектру наведений на рис. 9.2.

Таблиця 9.1 – Розшифрування електронограми від плівкової системи Au(3)/Fe(20)/Au(6)/Co(3)/П

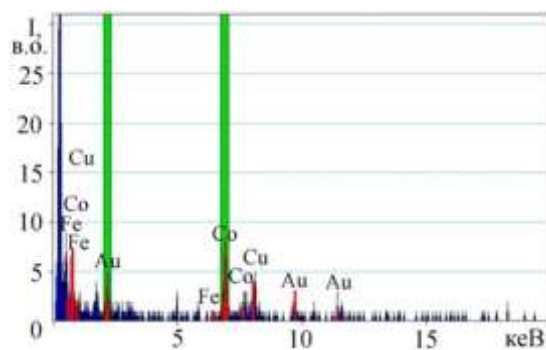
$T_{\text{в}} = 300 \text{ K}$					$T_{\text{в}} = 450 \text{ K}$				
$I$ , в.о.	$d_{hkl}$ , нм	$hkl$	фаза	$a$ , нм	$I$ , в.о.	$d_{hkl}$ , нм	$hkl$	фаза	$a$ , нм
Д.С. 0,86	0,235	111	Au	0,407	Д.С. 0,97	0,235	111	Au	0,407
Д.С. 0,94	0,203	002 110	ГЦЦ-Сo $\alpha$ -Fe	– 0,287	С. 0,68	0,203	002 110	ГЦЦ-Сo $\alpha$ -Fe	– 0,287
сл. 0,26	0,144	220 200	Au $\alpha$ -Fe	0,408 0,288	сл. 0,24	0,144	220 200	Au $\alpha$ -Fe	0,408 0,288
сл. 0,25	0,123	311	Au	0,409	сл. 0,32	0,123	311	Au	0,408
сл. 0,21	0,118	222 211	Au $\alpha$ -Fe	0,407 0,288	–	–	–	–	–
$\bar{a}(\text{Au}) = 0,408 \pm 0,001 \text{ нм};$					$a_0(\text{Au}) = 0,408 \text{ нм}$				
$\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 0,288 \pm 0,001 \text{ нм};$					$a_0(\alpha\text{-Fe}) = 0,289 \text{ нм}$				



а



б



в

Рисунок 9.2 – Мікроснімок плівки Au(3)/Co(20)/Fe(70)/П після відпалювання до 570 К (а), фрагмент попереднього мікроснімка, де вказана лінія (1), вздовж якої

проводився елементний аналіз (б), та відповідний EDAX-спектр (в)

## 9.2 Вплив деформації на ефект Кера в плівкових матеріалах

Магнітооптичні дослідження у поздовжній геометрії виявили чіткий прояв анізотропії для системи, яка вирощена направлено на монокристалі MgO(100). У цьому випадку характер залежності суттєво змінюється після відпалювання до 570 К, що не безпосередньо свідчить про наявність процесів дифузії та фазоутворення. На рис. 9.3 представлені залежності кута Кера від індукції магнітного поля та величини  $B_C$  від кута повороту  $\alpha$ , які ілюструють вплив анізотропії монокристалевої підкладки на польову і кутову залежності магнітооптичних характеристик та величину кута Кера тришарових плівок.

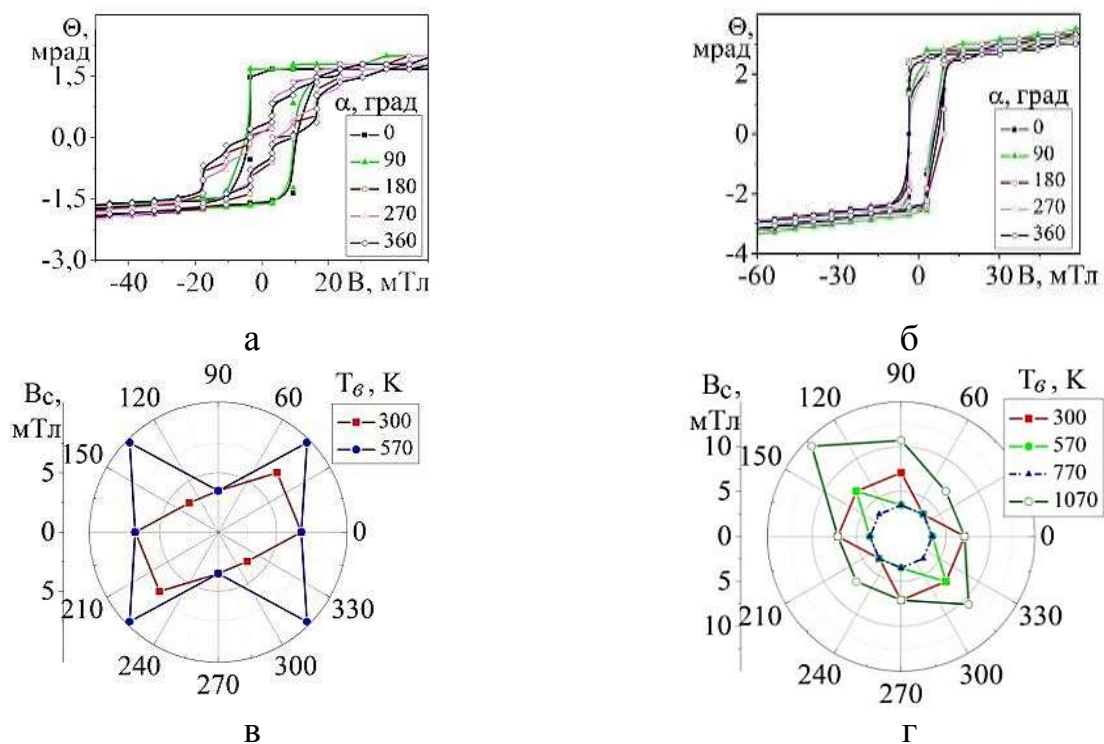


Рисунок 9.3 – Магнітооптичні залежності кута Кера від індукції магнітного поля при поздовжній геометрії вимірювання для систем Au(3)/Co(30)/Fe(30)/MgO (а) та Au(3)/Co(30)/Fe(30)/SiO<sub>2</sub>/Si після відпалювання до 750 К (б) при різних кутах повороту зразка ( $\alpha$ ); залежності  $B_C(\alpha)$  у полярних координатах при різних температурах відпалювання для систем на монокристалі (110) MgO (в) та SiO<sub>2</sub>/Si (г)

У випадку ізотропної підкладки  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  польова залежність намагніченості чотиришарових плівок та їх коерцитивність повністю визначається порядком чергування магнітних і немагнітних шарів (рис. 9.4, 9.5). Відносно товсті плівки Fe або Co ( $d \cong 20$  нм) не впливають на величину намагніченості та коерцитивності, якщо конденсуються безпосередньо на підкладку, а не між шарами Au (рис. 9.4). Відмітимо, що у випадку монокристалічної підкладки у плівкових системах реалізується двовісна анізотропія (рис. 9.3), в той час, як у випадку аморфної підкладки має місце фактично одновісна анізотропія (див. також [115]), що пояснюється особливостями магнітної взаємодії шарів Co і Fe через тонкий ( $d \cong 6$  нм) прошарок Au (рис. 9.5).

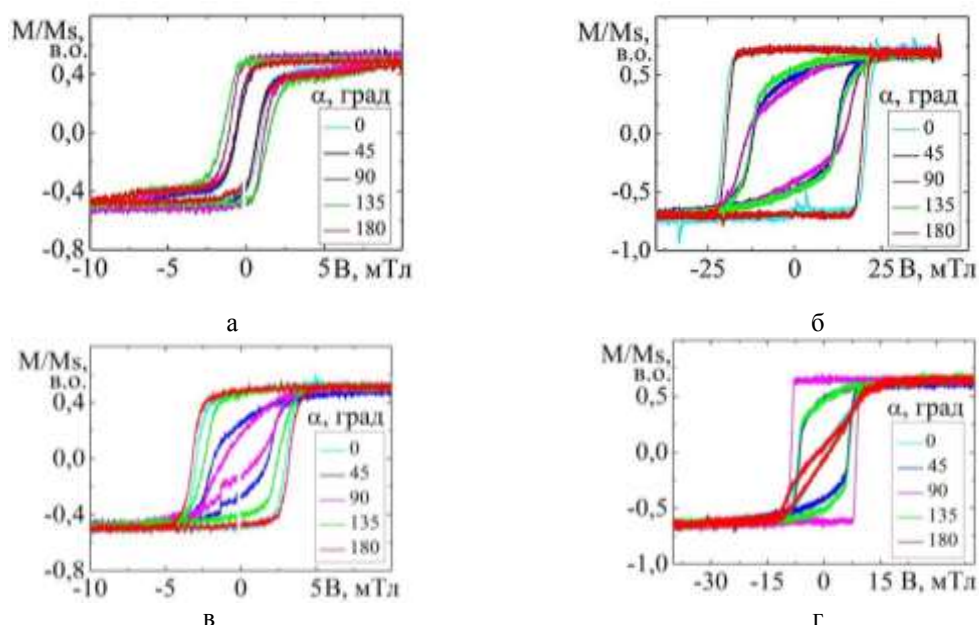


Рисунок 9.4 – Залежність намагнічування від індукції магнітного поля для плівкових систем:  $\text{Au}(3)/\text{Co}(3)/\text{Au}(6)/\text{Fe}(20)/\text{П}$  (а),  $\text{Au}(3)/\text{Fe}(20)/\text{Au}(6)/\text{Co}(3)/\text{П}$  (б),  $\text{Au}(3)/\text{Fe}(3)/\text{Au}(6)/\text{Co}(20)/\text{П}$  (в) та  $\text{Au}(3)/\text{Co}(20)/\text{Au}(6)/\text{Fe}(3)/\text{П}$  (г).  $T_g \cong 300$  К,  $M_s$  – намагніченість насичення, П –  $\text{SiO}_2/\text{Si}$

Вимірювання кута Кера  $\theta$  у вихідному стані  $\theta(0)$  і після поздовжньої деформації  $\theta(\epsilon_l)$  вказує на те, що відношення  $\theta(0)/\theta(\epsilon_l)$  збільшується до величини 1,5 - 1,8 при  $\epsilon_l = (0 - 10)\%$ , в той час як при поперечній деформації  $\theta(0)/\theta(\epsilon_t)$  – зменшується до величини 0,6. Кількісною характеристикою деформаційного

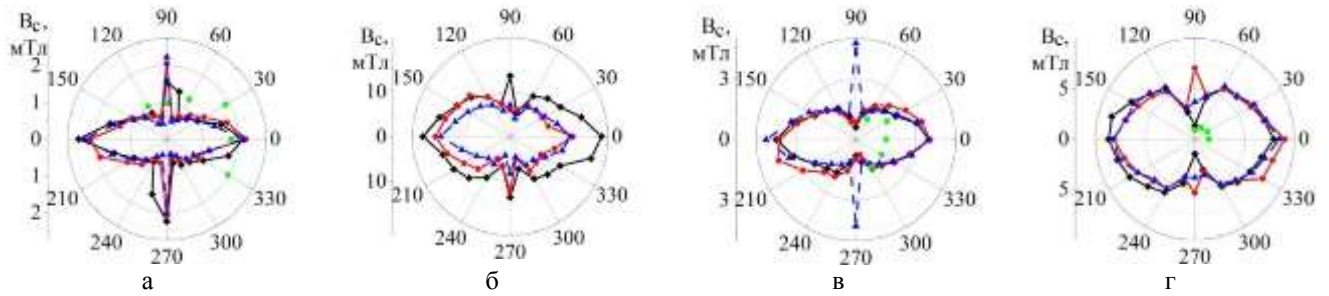


Рисунок 9.5 – Залежності  $B_C(\alpha)$  у полярних координатах при різних температурах відпалювання для плівкових систем: Au(3)/Co(3)/Au(6)/Fe(20)/П (а), Au(3)/Fe(20)/Au(6)/Co(3)/П (б), Au(3)/Fe(3)/Au(6)/Co(20)/П (в) та Au(3)/Co(20)/Au(6)/Fe(3)/П (г). Позначення,  $T_b$ , К:  $\blacklozenge$  – 300 К;  $\bullet$  – 450 К;  $\blacktriangle$  – 600 К та  $\blacksquare$  – 750 К

ефекту Кера у нашому випадку виступає  $\gamma_{l,t}^{\text{моке}} = \frac{1}{\theta(0)} \cdot \frac{\Delta\theta}{\Delta\varepsilon_{l,t}}$ , де  $\Delta\theta = \theta(\varepsilon_{l,t}) - \theta(0)$ . У

плівкових метеріалах на основі Fe або Co і Ag або Au величина  $\gamma_{l,t}^{\text{моке}} \cong 2-8$  одиниць. У випадку реалізації ефекта ГМО деформаційний коефіцієнт

$\gamma_l^{\text{ГМО}} = \frac{1}{\text{ГМО}(0)} \cdot \frac{\Delta\text{ГМО}}{\Delta\varepsilon_l}$  має осцилюючий характер при збільшенні  $\varepsilon_l$  і змінюється у

межах від однієї до десяти одиниць.

### 9.3 Кореляція між структурно-фазовим станом і електрофізичними та магніторезистивними властивостями плівкових матеріалів

Узагальнені на основі літературних і власних експериментальних даних концентраційні та розмірні залежності МО і ГМО наведені на рис. 9.6 і 9.7 відповідно. Для систем на основі Ag і Fe отримана аналогічна за характером концентраційна залежність, але з меншою амплітудою ГМО (до 5 %).

Різде зменшення величини МО при збільшенні середнього радіуса гранул можна пояснити зменшенням їх концентрації. Це призводить до зниження ефективності СЗРЕ і, як наслідок, зменшення величини ГМО. Своєрідним

оптимальним значенням радіуса гранул виступає величина  $r_{\text{гр}} \cong 4\text{-}5$  нм, а область їх суперпарамагнітності реалізується при  $r_{\text{гр}} < 2$  нм.

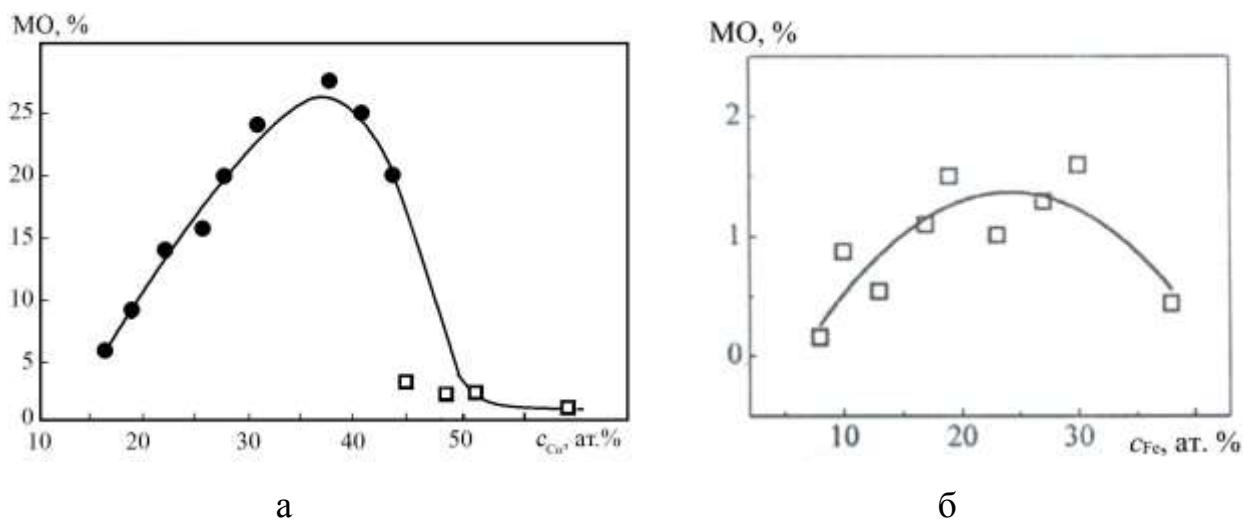


Рисунок 9.6 – Концентраційна залежність МО для плівкових сплавів на основі Со і Аг (а) та (Fe + Аг) (20)/Пі (б): ● – дані роботи [107]; □ – наші дані

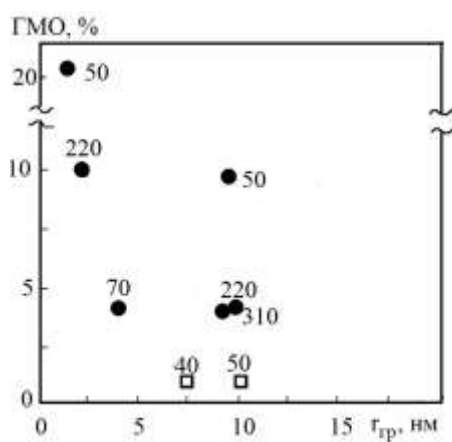


Рисунок 9.7 – Розмірна залежність ГМО при  $T \cong 300$  К для плівкових сплавів на основі Со і Аг: ● – дані із роботи [112]; □ – наші дані. Біля точок вказана товщина зразків у нм

Таким чином, дослідження магніторезистивних властивостей плівок феромагнетик (Со, Fe)/благородний метал (Аг) вказують на те, що при загальній концентрації атомів немагнітної компоненти від 15 до 68 ат. % в таких матеріалах утворюються гранули, що спричиняє СЗРЕ та ефект ГМО, величина якого при

$T = 300 \text{ K}$  не перевищує 0,6 %. Указані плівкові системи можуть бути використані як чутливі елементи сенсорів, оскільки фазовий склад гранул має широкі температурні і концентраційні інтервали стабільності.

Слід також звернути увагу на ту обставину, що у наших експериментах плівкові сплави і псевдосплави отримувалися, на перший погляд, за різними методиками – пошаровою конденсацією з наступною термообробкою або одночасною конденсацією окремих компонент. У результаті ми отримуємо зразки із однаковим структурно-фазовим станом та електрофізичними і магніторезистивними властивостями. Це означає, що в обох випадках відбувається ефективне перемішування атомів із формуванням елементів гранульованого стану. Зрозуміло, що така ситуація стала можливою лише завдяки відносно малим товщинам окремих шарів (порядка 10 нм) у багат шарових або у мультишарових структурах. При переході до товщини порядку 100 нм за рахунок взаємної дифузії атомів можна реалізувати гранульовані т.р. лише біля інтерфейсів, а не по усьому об'єму пліки.

Відмітимо також, що згідно даних робіт [116] – [117] магнітні властивості плівкових фаз Лавеса  $L1_1$  ( $\text{FeAu}_3$ ),  $L1_0$  ( $\text{FeAu}$ ) і  $L1_2$  ( $\text{Fe}_3\text{Au}$ ) дуже відрізняються, що узгоджується з результатами роботи [118]. Зокрема, намагніченість насичення  $B_s$  фази  $L1_2$  при 300 K в 15 разів більше у порівнянні із зразками  $L1_1$ , але при цьому величина МО відносно мала (0,3 %).

Ці результати, а також описані в частині 2 дозволяють говорити про можливе ефективне застосування гранульованих плівок як чутливих елементів тензодатчиків (плівки на основі Fe та Au) і датчиків магнітних характеристик (плівки на основі фази  $L1_2$  інтерметаліду  $\text{Fe}_3\text{Au}$ ).

## ВИСНОВКИ

1. 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, які отримувалися методами одночасної конденсації компонент або формуванням багат шарової плівкової системи:

- у системі на основі Co 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 ГЦП-Co, середній розмір яких становить 5–10 нм;

- у системі на основі Fe та Ag або Au також спостерігається утворення т.р.- Ag(Fe) або Au(Fe) у зразках, відпалених вище температури  $T_6 = 700$  К. На електронограмах зразків, які відпалювались до 800 К, фіксуються лінії від  $Fe_3O_4$ ;

- встановлено, що формування гранульованого твердого розчину відбувається найбільш ефективно при загальній концентрації атомів магнітної компоненти 40 – 60 ат.% Co та 20 – 45 ат.% Fe.

2. Залежність параметра ґратки від загальної концентрації атомів не узгоджується з правилом Вегарда як в системі на основі Co та Ag або Au, так і в системі на основі Fe та Ag(Au), оскільки в даних системах має місце обмежена взаємна розчинність атомів і їх фазовий склад відповідає евтектиці з невеликою добавкою твердих розчинів: т.р.- (Ag(Au), Co(Fe)) + ГЦК-Ag або Au + ГЦП-Co або ОЦК-Fe + сліди  $Fe_3O_4$ .

3. Дослідження дифузійних процесів методом ЕДС і ВІМС дозволив рознести внески КСД, ІСД та ТД в ефективну величину коефіцієнта взаємної дифузії атомів; отримано, що коефіцієнт  $D(КСД+ІСД)$  має значення порядку  $10^{-18}$  м<sup>2</sup>/с, а  $D(ТД)$  в залежності від температури може змінюватись від  $10^{-21}$  до  $10^{-19}$  м<sup>2</sup>/с.

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



та фізичних процесів в них.

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

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

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

7. У процесі дослідження тензорезистивних властивостей було встановлено:

- середнє значення  $(\gamma)_{\text{dif}}$  для плівок на основі Ag та Co змінюється в інтервалі від 1,40 до 3,67 од. в інтервалі деформацій  $\Delta \varepsilon_l = (0 \div 1)\%$ , та від 1,49 до 4,92 при  $\Delta \varepsilon_l = (0 \div 2)\%$  в залежності від концентрації магнітної компоненти в плівковому зразку. При товщині більше 50 нм і  $\varepsilon_l$  близько до 0,4 % спостерігається перехід від пружної до пластичної деформації, про що свідчить мінімум КТ на розмірній залежності  $(\gamma)_{\text{dif}}$  від загальної товщини;
- значення  $(\gamma_l)_{\text{dif}}$  для гранульованих плівок більші, ніж в одношарових зразках Ag або Au;
- деформація переходу від пружної до квазіпружної деформації у всіх досліджуваних зразках складає 0,3–0,4 % і збільшується для систем, в яких

утворилися т. р. та гранульований сплав.

8. У гранульованих плівкових сплавах на основі Fe і Au вперше спостерігався концентраційний аномальний тензоефект, суть якого полягає у значному збільшенні (від 2 до 80 одиниць) величини КТ в області пластичної деформації  $\epsilon_1 > 1\%$  при концентрації магнітної компоненти  $c = 55 - 75$  ат.% Fe; дослідження фазового складу вказують на реалізацію в цьому інтервалі концентрацій фазового переходу: гранульований ГЦК т.р. Au(Fe)  $\rightarrow$  ОЦК т.р.  $\alpha$ -Fe(Au) із диспергуванням зерен у плівках.

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

10. Проведені дослідження магнітоопору двокомпонентних плівок на основі Fe або Co та Au у вигляді тришарових систем Fe/Au/Fe/П і Co/Au/Co/П або одношарової плівки, отриманої методом одночасної конденсації компонент із наступною термообробкою із загальною товщиною зразків до 50 нм. Установлено, що у невідпалених і відпалених до 700 К зразках спостерігаються ознаки ГМО із амплітудою ефекту 0,11 %. Максимальна величина МО спостерігається у поперечній, а мінімальне значення у перпендикулярній геометрії вимірювання.

11. Отримані результати стосовно магніторезистивних властивостей (магнітоопір) і ефекту Кера (кут поворота Кера у залежності від індукції магнітного поля, коерцитивність і намагніченість) три- та чотиришарових плівок Au(3)/Co(20)/Fe(70)/П, Au(3)/Co(3)/Au(6)/Fe(20)/П, Au(3)/Fe(20)/Au(6)/Co(3)/П, Au(3)/Fe(3)/Au(6)/Co(20)/П та Au(3)/Co(20)/Au(6)/Fe(3)/П, зконденсованих у вакуумі  $10^{-8}$  Па на монокристалічну підкладку (100) MgO і аморфну SiO<sub>2</sub>/Si:

- встановлено, що у плівкових системах реалізується анізотропний феромагнітний опір із амплітудою від 0,1 – 0,2 до 0,5 – 0,7%;
- на основі вимірювання ефекту Кера отримано, що величина коерцитивності змінюється в межах від декількох до 40 мТл;

- плівки на підкладках із (100)MgO мають двовісну, а на SiO<sub>2</sub>/Si – одновісну магнітну анізотропію;
- на основі залежності кута Кера від деформації (поздовжня і поперечна) здійснено розрахунок деформаційного коефіцієнта МОКЕ для різних плівкових систем, який змінюється в межах 3-8 одиниць при деформації зразків до 10% у процесі вимірювання кута Кера.

12. Проведені дослідження магніторезистивних властивостей три- і чотиришарових плівок на основі тонких шарів  $\alpha$ -Fe і Co ( $d \cong 20$  нм) та ультратонких шарів Au і Ag ( $d \cong 3$  і 6 нм) і  $\alpha$ -Fe і Co ( $d \cong 3$  нм) однозначно вказують на відсутність в них ефекту ГМО і його ознак, оскільки у всіх трьох геометріях вимірювання має місце анізотропний МО із малою амплітудою (від 0,1-0,2 % до 0,5-0,7 %).

13. Причина цього пов'язана із вибором немагнітної компоненти у вигляді ультратонких шарів Au, що не сприяє формуванню системи феромагнітних гранул у матриці Au як у невідпалених, так і відпалених зразках, а значить не сприяє реалізації спін-залежного розсіювання електронів (СЗРЕ) і ефекту ГМО; несучільний характер плівок Au і Ag не дозволяє реалізувати СЗРЕ на інтерфейсах т.р. Au(Ag)/Co і т.р. Au(Ag)/ $\alpha$ -Fe.

14. Отримані результати дозволяють запропонувати чутливі елементи для тензодатчиків із чутливістю у декільки десятків одиниць (гранульовані плівки на основі Fe та Au) та матеріали із високою коерцитивністю (гранульовані плівки на основі фази L1<sub>2</sub> (Fe<sub>3</sub>Au)); крім того прикладні додаткові дослідження дозволили запропонувати наночастинки благородних металів як чутливий елемент сенсора плазмових коливань, а тришарову плівку на основі Fe або Co та благородних металів як чутливий елемент сенсора магнітного поля.

**ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАННЯ**

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.
3. 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. Гигантський магніторезистивний ефект в магнітоупорядочених трохслойних плівках / 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. Rev. 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.
10. 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.
11. 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. Superparamagnetic Fe clusters in Ag matrix produced by sputter-gas aggregation / G.-F. Hohl, T. Hihara, M. Sakurai et al. // Appl. Phys. Lett. – 1995. – V. 66, № 3. – P. 385-387.

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. Mikrostructural investigation on ion beam mixed Fe/Ag multilayer / A.K. Srivastava, S. Amirthapandian, B.K. Panigrahi et al. // Nucl. Instr. Method. Phys. Res. – 2006. – V. 244. – P. 359 - 364.

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. Черноус // Тонкие пленки в оптике и электронике. – Харьков: ННЦ ХФТИ, 2003. – С. 205–208.
24. Касютич О. И. Структура наноразмерных систем Co/Cu 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. Mikrostructure and nanoindentation hardness of Ag/Fe multilayers / Xiao-ying Zhu, Xue-jing Liu, Fei Zeng, Feng Pan // Trans. Nonferrous Met. Soc. China. – 2010.– V. 20. – P. 110–114.
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. Magnetoresistance and magnetic properties of electron beam deposited  $(Co_{50}Fe_{50})_xAg_{1-x}$  granular films / A. Ya. Vovk, V.O. Golub, L. Malkinsky et al. // Металлофиз. новейшие технол. – 2003. – Т. 25, № 7. – С. 827–841.

33. 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.
34. Study on GMR in Co-Ag thin granular films / Sang H., Jiang Z.S., Guo G. et al. // J. Magnet. Mag. Mater. – 1995. – V.140-144. – P. 589–590.
35. Study on GMR in Co-Ag thin granular films / H Sang., Z.S. Jiang, G. Guo et al. // J. Magn. Magn. Mater. – 1995. – V.140-144. – P. 589–590.
36. M.Gester, K.Ounadjela. Anisotropic giant magnetoresistance in granular CoAg films // J. Magn. Magn. Mater. – 1997. – V.165. – P. 323–325.
37. Magnetotransport and coupling in nanostructured Co/Ag films /G.J. BrachoRodriguez, L.G. Pereira, M.G.M. Miranda et al. // J. Magn. Magn. Mater. – 2000.– V. 214. – P. 78–84.
38. Фролов Г.И., Жигалов В.С., Мальцев В.К. Влияние температуры на структурные превращения в нанокристаллических пленках кобальта // ФТТ. – 2000. – Т.42., №2. – С.326–328.
39. Закономерности  $\beta \rightarrow \alpha$ -полиморфного превращения в кобальте при возрастании скорости охлаждения / Д.А. Мирзаев, В.М. Счасливцев, В.Г. Ульянов и др. // ФММ. – 2002. – Т.93, №6. – С.58–64.
40. 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.
41. Lang C., Schmitz G. Macrostructure-controlled interdiffusion of Cu/Co/Au thin films investigation by three-dimensional atom probe // Mater. Sci. Eng. A. – 2003. – V. 353. – P. 119–125.
42. Luby S., Majkova E. Tailoring of multilayer interfaces by pulsed laser irradiation // Appl. Sur.Sci. – 2005. – V.248. – P.316–322.
43. Энергетические характеристики структурной стабильности адатомов и ультрамалых кластеров кобальта на поверхности Cu(001 и др.) / Н.А. Леванов, Д.И. Бажанов, В.С. Степанюк и др.// Поверхность. – 2000. – №9. – С.69–72.
44. Maximenko A., Marsralek M., Fedotova J., Kasiuk J., Zavadski S. Structure and

magnetic properties of Co/Pd multilayers prepared on porous nanotubular TiO<sub>2</sub> substrate // Journal of Magnetism and Magnetic Materials.- V.434.- P. 154-163.

45. Microstructure and electron transport properties of AuxCo1-x nano-alloyes embedded in polyacrylonitrile thin films / H. Nabika, K Akamatsu., M. Mizuhata et al. // J.Mater. Chem. – 2002. – V.12. – P. 2408-2411.

46. Vrenken H., Kooi B.J. and De Hosson T.M. Microstructure and properties of giant magnetoresistance granular Au<sub>80</sub>Co<sub>20</sub> alloys // J. Appl. Phys. – 2001. – V. 89, № 6. – P. 3381-3388.

47. Influence of the growth pressure on the magnetic and structural properties of ultrathin Co/Au sputtered multilayers / F. Casoli, F. Albertini, E. Bontempi et al. // Scripta Materialia. – 2003. – V. 48. – P. 955-960.

48. Influence of annealing on Co/Au multilayers: a structural and magnetic study / G. Gubbiotti, G. Carlotti, F. Albertini et al. // Thin Solid Films. – 2003. – V. 428. – P. 102-106.

49. Magnetic properties and magnetoresistance effect in Co/Au, Ag nanostructure films produced by pulse electrodeposition / C.L.S. Rizal, A. Yamada, Y. Hori et al. // Phys. Stat. Sol. (C). – 2004. – V. 1, № 7. – P. 1756-1759.

50. Bosco E. Phase transformation in Au-Fe melt spun alloys / E. Bosco, P. Rizzi, M. Baricco // Materials Science and Engineering A. – 2004. – V. 375-377. – P. 468-472.

51. Mobilities and diffusivities in fcc Fe-X (X = Ag, Au, Cu, Pd and Pt) alloys / Y. Liu, J. Wang, Y. Du et al. // Calphad: Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry. – 2010. - V. 34., № 3. – P. 253–262.

52. Hyun Y.H. Properties of Au-Fe disordered alloy films near the fcc-bcc structural transformation / Y.H. Hyun, Y.P. Lee // J. Korean Phys. Soc. – 2003. – V. 43., № 4. – P. 625–628.

53. Soft X-ray emission spectroscopy used for the characterization of a-C and CN<sub>x</sub> thin films / S.A. Nepijko, A. Chernenkaya, K. Medjanik et al. // Thin Solid Films. – 2015. V. – 577. – P. 109–113.

54. Горелик С. С. Рентгенографический и электронно-оптический анализ / С. С. Горелик, Ю. А. Скаков, Л. Н. Расторгуев. – Москва: МИСИС, 1994. – 328 с.



55. Каур И. Диффузия по границам зерен и фаз / И. Каур, В. Густ. – Москва : Машиностроение, 1991. – 448 с.
56. Скороход В.В., Уварова І.В., Рагуля А.В. Фізико-хімічна кінетика в наноструктурних системах. – Київ: Академперіодика, 2001. – 179 с.
57. Kitada M. Magnitoresistance and microstructure of sputtered Au-Co films / M. Kitada // *J. Magnet. Mag. Mater.* – 2000. – V.208. – P. 244–250.
58. Физико-химические свойства элементов: Справочник / Под ред. Г. В. Самсонова. – Киев : Наук. думка, 1965. – 807 с.
59. Berkowitz A.E., Mitchell J.R., Carey M.J., Young A.P., Zhang S., Spada F.E., Parker F. T., Hutten A., Thomas G.: Giant magnetoresistance in heterogeneous Cu-Co alloys. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3745-3748 (1992).
60. Fert, A., Duvail, J., Valet, T.: Spin relaxation effects in the perpendicular magnetoresistance of magnetic multilayers. *Phys. Rev. B* **52**, 6513-6521 (1995).
61. Guslienko K.Yu.: Phenomenological theory of the giant magnetoresistance of ferromagnet-nonmagnetic metal granular media. *Phys. Solid State* **40** (10), 1697-1701 (1998).
62. Granovskii A. B., Vedyayev A. V., Kalitsov A. V.: Anisotropy of giant magnetoresistance in magnetic multilayers and granular films. *Fizika Tverdogo Tela* **37**, 337-343 (1995).
63. Granovsky A. B., Il'in M., Zhukov A., Zhukova V., Gonzales Kh.: Giant magnetoresistance of granular microwires: Spin-dependent scattering in intergranular spacers. *Phys. Solid State* **53** (2), 320-322 (2011).
64. Protsenko S.I., Odnodvoretz L.V., Cheshko I.V.: Fenomenological model of electrophysical properties of granular film alloys. *Visnyk SumDU. Seria: Fizyka, matematyka, mekhanika*, **1**, 22-27 (2008).
65. Odnodvoretz L.V., Shumakova M.O., Protsenko I.Yu., Shabelnyk Yu.M., Shumakova N.I. Phenomenological Theory of Strain Effect in Granular Film Alloys / *Proceedings of the International Conference «Nanomaterials: Applications and Properties»*, 3, 1, 01NTF09 (2014).

66. Rizal C., Ueda Y., Karki B.R.: Magnetic properties of Fe/Cu multilayers prepared using pulsed-current electrodeposition. *J. Nano- Electron. Phys.* **4**, 01001-1 - 01001-3 (2012).
67. Odnodvoret L. Influence of magnetic field on thermal coefficient of resistance of the granular film alloys // Proceedings of the International Conference «Nanomaterials: Applications and Properties», **3**, 1, 02NNF13-4 (2014).
68. Kondrakhova D.M., Shabelnyk Yu.M. Synashenko O.V., Protsenko I.Yu.: Strukturno-fazovyi stan, elektrofizychni ta magnetorezystyvni vlastyvosti tverdykh rozchyniv u plivkovykh systemakh na osnovi Co i Cu abo Ag ta Fe i Cr abo Cu. *Usp. Fiz. Met.* **13**, 241–267 (2012).
69. Grunberg P., Barnas J., Saurenbach F., Fub J.A., Wolf A., Vohl M.: Layered magnetic structures: antiferromagnetic type interlayer coupling and magnetoresistance due to anparallel alignment. *J. Mag. Magn. Mater.* **93**, 58-66 (1993).
70. Rizal C., Niraula B.B.: Ferromagnetic Alloys: Magnetoresistance, Microstructure, Magnetism, and Beyond (Review). *J. Nano- Electron. Phys.* **7** (4), 04068 (2015).
71. Peng X., Morrone A., Nikolaev K., Kief M., Ostrowski M.: Effect of material selection and background impurity on interface property and resulted CIP-GMR performance. *J. Mag. Magn. Mater.* **321**, 2902-2910 (2009).
72. Wang J.-Q., Xiao G.: Transition-metal granular solids: Microstructure, magnetic properties, and giant magnetoresistance. *Phys. Rev. B* **49**, 3982-3996 (1994).
73. Bakonyi I., Peter L. Electrodeposited multilayer films with giant magnetoresistance (GMR): Progress and problems. *Prog. Mater. Sci.* **55**, 107 (2010).
74. Nepijko S.A., Kutnyakhov D., Protsenko S.I., Odnodvoret L.V., Schönhense G.: Sensor and microelectronic elements based on nanoscale granular systems. *J. Nanopart Res* **13**, 6263-6281 (2011).
75. Peng D.L., Wang J., Wang L. Liu X., Wang Z., Chen Y. Electron transport properties of magnetic granular films. *Sci China-Phys Mech Astron.* **56**, 15-28 (2013).
76. Ju Y., Xu C., Li Z.Y.: Temperature dependence of giant magnetoresistance in CoAg granular composite. *J. Magn. Magn. Mater.* **223**, 267-272 (2001).

77. Hite D. A., Russek S. E., Pappas D. P.: In situ conductance characterization of Fe/Ag multilayer contacts on GaAs. *J. Appl. Phys.* **94**, 621-625 (2003).
78. Alonso J., Fdez-Gubieda M. L., Sarmiento G., Barandiarán J. M., Svalov A., Orue I., Chaboy J., Fernández Barquín L., Meneghini C., Neisius T., Kawamura N.: Influence of the interface on the electronic channel switching of a Fe–Ag thin film on a Si substrate *Appl. Phys. Lett.* **95**, 082103 (2009).
79. Csontos M., Balogh J., Kaptás D., Kiss L. F., Kovács A., Mihály G.: Magnetic and transport properties of Fe-Ag granular multilayers. *Phys. Rev. B* **73**, 184412 (2006).
80. Zong R.L., Wen S.P., Zeng F., Gao Y., Song C., He B., Pan F.: fcc solid solution alloy films formed in immiscible Fe–Ag system and their mechanical behaviors. *Appl. Surf. Sci.* **253**, 2993-2998 (2007).
81. Li X. Y., Kong L. T., Liu B. X.: Enhanced magnetic moment of Fe in fcc-structured Fe-Ag and Fe-Au alloys synthesized by ion-beam manipulation. *Phys. Rev. B* **72**, 054118 (2005).
82. Srivastava A.K., Amirthapandian S., Panigrahi B.K., Gupta Ajay, Nandedkar R.V.: Microstructural investigations on ion beam mixed Fe/Ag multilayer. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* **244**, 359-364 (2006).
83. Alof C., Stahl B., Ghafari M., Hahn H.: Interface contribution to giant magnetoresistance in granular AgFe studied with Mössbauer spectroscopy. *J. Appl. Phys.* **88**, 4212-4215 (2000).
84. J. Du, B. Zkang, R.K. Zheng et al.: Memory effect and spin.-glass-like in Co-Ag granular films. *Phys. Rev. B.* - 2007.- V.75.- P.014415-014422.
85. Sumiyama K., Hihara T., Makhlof S.A., Wakoh K., Sakurai M., Xu Y., Konno T.J., Yamamuro S., Suzuki K.: Structural difference between Fe/Cu and Fe/Ag granular films produced by a cluster beam method. *Mater. Sci. Eng., A.* **217-218**, 340-343 (1996).
86. Hohl G.-F., Hihara T., Sakurai M., Konno T. J., Sumiyama K., Hensel F., Suzuki K.: Superparamagnetic Fe clusters in Ag matrix produced by sputter-gas aggregation *Appl. Phys. Lett.* **66**, 385-387 (1995).

87. Hyun Y. H., lee Y.P., Kudryavtsev Y. V., Gontarz R.: Properties of Au-Fe disordered alloy films near the fcc-bcc structural transformation. *J. Korean Phys.Soc.* **43**, 625-628 (2003).
88. Bosco E., Rizzi P., Baricco M.: Phase transformations in Au-Fe melt spun alloys. *Mater. Sci. Eng., A* **375–377**, 468-472 (2004).
89. Mukherjee P., Zhou Lin, Kramer M. J., Shield J. E.: Formation of non-equilibrium Fe-Au solid solutions in nanoclusters. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 243103 (2013).
90. Takanashi K., Mitani S., Sano M., Fujimori H., Nakajima H., Osawa A.: Artificial fabrication of an L10-type ordered FeAu alloy by alternate monatomic deposition. *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1016-1018 (1995).
91. Mukherjee P., Zhang Y., Kramer M. J., Lewis L. H., Shield J. E.: L1<sub>0</sub> structure formation in slow-cooled Fe-Au nanoclusters. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 211911 (2012).
92. Cheshko I.V., Pazukha I.M., Protsenko S.I., Shabelnyk M.Yu, Shapko D.V.: Magnetoresistive and magneto-optical properties nanosize film systems based on Fe and Au Proceedings of the International Conference «Nanomaterials: Applications and Properties», **2**, 1, 01NTF40 (2013).
93. Pylypenko O.V., Odnodvoretz L.V., Shumakova M.O., Protsenko I.Yu. The concentration anomaly of strain coefficient binary film system based on Au and Fe atoms // *Problems Atomic Sci. Technol.*, **5**, 131 (2016).
94. Tellier C.R., Tosser A.J. Size effects in thin films. Elsevier, Amsterdam – Oxford – New York (1982).
95. Lasyuchenko O., Odnodvoretz L., Protsenko I. Microscopic theory of the sensitivity of multi-layer polycrystalline films // *Cryst. Res. Technol.*, **35**, 3, 329 (2000).
96. Schad R., Potter C.D., Belien P. Giant magnetoresistance in Fe/Cr superlattices with very thin Fe layers // *Appl. Phys. Lett.* – 1994. – V.64, №25. – P. 3500 – 3502.
97. Parkin S.S.P., Li Z.G., Smith D.J Giant magnetoresistance in antiferromagnetic Co/Cu multilayers // *Appl. Phys. Lett.* – 1991. – V. 58, №23. – P.2710 – 2712.

98. Vergara J., Madurga V. Effect of annealing processes on the magnetoresistance in pulsed laser ablated-deposited  $\text{Ag}_{90}\text{Co}_{10}$  and  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  films // *J. Non-Crystalline Sol.* B. – 2001. – V. 287. – P. 385–389.
99. Arana S., Castaño E., Gracia F.J. High temperature circular position sensor based on a giant magnetoresistance nanogranular  $\text{Ag}_x\text{Co}_{1-x}$  alloy // *IEEE Sens. J.* B. – 2004. – V. 4. – P. 221 – 225.
100. High sensitivity linear position sensor developed using granular Ag-Co giant magnetoresistances / S. Arana, N. Arana, R. Gracia, E. Castaño // *Sens. Actuat. A: Phys.* B. – 2005. – V. 123. – P. 116 – 121.
101. Giant magnetoresistance in ferromagnet/super conductor super lattices/ V. Pefta, Z. Sefrioui, D. Arias, C. Leon, J. Santamaria, J.L. Martinez, S.G.E. teVelthuis, A. Hoffmann // *Phys. Rev. Lett.* B. – 2005. – V. 94. – P. 057002 – 057006.
102. Synashenko O.V., Tkach O.P., Buryk I.P., Odnodvoret L.V., Protsenko S.I., Shumakova N.I. Magnetoresistive properties of multilayer nanodimensional film systems // *Probl. Act. Sci. Technol.* – 2009. – V. 6. – P. 169 – 174.
103. Protsenko I.Yu., Mehta P.K., Panchal C.J., Tyschenko K.V., Odnodvoret L.V., Shabelnyk Y.M., Shumakova N.I. Magnetoresistive properties of quasi granular film alloys  $\text{Fe}_x\text{Pt}_{1-x}$  at the low concentration of Pt atoms // *J. Nano- Electron. Phys.* – 2014. – V. 6, №1. – P. 01031-1 – 01031-5.
104. Vovk A.Ya., Wang J.Q., Pogoriliy A.M., Shypil' O.V., Kravets A.F. Magneto-transport properties of  $\text{CoFe-Al}_2\text{O}_3$  granular films in the vicinity of the percolation threshold // *J. Magn. Magn. Mater.* – 2002. – V. 242 - 245. – P. 476 – 478.
105. Tunneling magnetotransport in electron beam deposited  $(\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50})_x (\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$  cermet films / A.Ya. Vovk, J.-Q. Wang, A.M. Pogoriliy, O.V. Shypil, A.F. Kravets, H.R. Khan // *Металлофиз. новейшие технол.* – 2002. – Т. 24, № 8. – С. 1055 - 1064.
106. Bakonyi I., Peter I. Electrodeposited multilayer films with giant magnetoresistance (GMR): progress and problems / I. Bakonyi, // *Progress in Mater. Sci.* – 2010. – V. 53. – P. 107 – 245.
107. Карпенков С. Х. Магниторезистивные материалы // *Электроника: наука, технология и бизнес.* – №1. – 2001. – С. 50 – 53.

108. Magnetic and transport properties of Fe-Ag granular multilayers / M. Csontos, J. Balogh, D. Kaptas, L.F. Kiss, G. Mihaly // *Phys. Rev.B.* – 2012. – V.73. – Iss. 18. – ID 184412.
109. Sensor and microelectronic elements based on nanoscale granular systems (review) / S.A.Nepijko, D. Kutnyakhov, L.V. Odnodvoretz, S.I. Protsenko, G.J. Schonhense // *J. Nanopart. Res.* – 2011. – V.12(13). – P.6263 – 6281.
110. Odnodvoretz L.V., Protsenko I.Yu., Tkach O.P., Shabelnyk Yu.M., Shumakova N.I. Magnetoresistive effect in granular film alloys based on Ag and Fe or Co // *J. Nano-Electron. Phys.* – 2017. – V.9, №2. – P. 02021-1– 02021-8.
111. Odnodvoretz L.V., Protsenko I.Yu., Shabelnyk Yu.M., Shumakova M.O., Tkach O.P. Physical properties of film alloys based on ferromagnetic and noble metals (review). I. Film materials based on Fe and Ag or Au // *J. Nano- Electron. Phys.* – 2016. – V.8, №3. – P. 03034-1 –03034-11.
112. Cheshko I.V., Odnodvoretz L.V., Protsenko I.Yu., Shumakova M.O., Tkach O.P. Physical properties of film alloys based on ferromagnetic and noble metals (review). II. Film materials based on Co and Ag or Au // *J. Nano- Electron. Phys.* – 2016. – V.8, № 4. – P. 04028- 1 – 04028- 7.
113. Fedchenko O.V., Protsenko S.I., Odnodvoretz L.V., Cheshko I.V., Protsenko I.Yu. Magnetoresistive and magneto-optical effects in granular film alloys based on Co, Au and Fe // *J. Nano- Electron. Phys.* –2017. – V.9, №4. – P.04011-1 – 04011-6.
114. Tkach O.P., Odnodvoretz L.V., Shumakova M.O., Protsenko I.Yu. Magnetoresistance of film materials based on iron and noble metals / Proceedings of the IEEE 7th International Conference “Nanomaterials: Applications and Properties (NAP-2017)”. – Zatoka: SSU, 2017. – Part 2. – P.02NTF40-1 - 02NTF40-4: <http://nap.sumdu.edu.ua/index.php/nap/nap2017/paper/view/2190>.
115. Kenane S., Voiron J., Benbrahim N., Chainet E., Robaut F. Magnetic properties and giant magnetoresistance in electrodeposited Co–Ag granular films // *J. Magn. Mater.* – 2006. – V.297. – P.99 – 106.

116. Mukherjee P., Manchanda P., Kumar P., Lin Zhou, Kramer M.J., Kashyap A., Skomski R., Sellmyer D., Jeffrey E. Size-induced chemical and magnetic ordering in individual Fe-Au nanoparticles // ACS Nano. – 2014. – V.8. – P. 8113–8120.
117. Mukherjee P., Zhang Y., Kramer M. J., Lewis L. H., Shield J. E.: L10 structure formation in slow-cooled Fe-Au nanoclusters // Appl. Phys. Lett. – 2012. – V.100.– P. 211911 - 211913.
118. Numerical simulation of giant magnetoresistance in magnetic multilayers and granular films / Y. Yamagishi, S. Honda, J. Inoue, H. Itoh // Phys. Rev. B . – 2010.– V.81, №5. – P. 054445-1 – 054445-5.