

ВІДЗИВ

офіційного опонента про дисертацію Шкурудоди Юрія Олексійовича
«Електрофізичні і магніторезистивні властивості несиметричних
та гранульованих систем в умовах протікання твердофазних реакцій»,
яку подано на здобуття наукового ступеня доктора фізико-математичних наук
зі спеціальністі 01.04.01 – фізики приладів, елементів і систем

Дана дисертація стосувалася дослідження важливих для сенсорної техніки особливостей структурно-фазового складу, магнеторезистивних і магнетичних властивостей нанорозмірних матеріалів функціонального призначення на основі феромагнетних (Co , Fe , $\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x}$) та немагнетних (Cu) компонентів в умовах утворення твердих розчинів, твердофазних реакцій, формування структур, гетерогенних за розподілом складу.

Дослідження фізичних властивостей магнетично неоднорідних плівкових матеріалів є комплексною проблемою, що полягає у створенні нанорозмірних систем із заданою мікроструктурою, вивчені взаємозв'язку між структурою та властивостями і, як наслідок, одержанні плівкових матеріалів із властивостями, які задовольняють вимогам сучасного рівня розвитку техніки та технології. Зростання інтересу до вивчення таких об'єктів зумовлено також реалізацією в них унікальних ефектів (наприклад, ефектів гігантського та тунельного магнетоопорів), що відкривають широкі можливості для створення різноманітних пристройів наноелектроніки та спінtronіки. У теперішній час розроблення функціональних матеріалів із поліпшеними робочими характеристиками і параметрами та вивчення фізичних процесів у них є предметом дослідження для плівкового матеріалознавства. Серед матеріалів для створення три- та багатошарових систем перспективними є навіть бінарні стопи на основі феромагнетних металів, використання яких уможливлює одержувати матеріали із заданими властивостями за рахунок зміни складу стопу, умов конденсації й оброблення.

Незважаючи на численність експериментальних результатів стосовно магнеторезистивних і магнетичних властивостей багатошарових плівок та гетерогенних плівкових матеріалів елементної бази приладових структур, дослідники, як правило, зосереджують свою увагу на наноматеріялах на основі стопів $\text{Fe}_{0,2}\text{Ni}_{0,8}$ та $\text{Fe}_{0,5}\text{Ni}_{0,5}$. Але практично немає праць, де було б наведено результати дослідження фізичних властивостей зазначених структур у широкому інтервалі концентрацій і товщин. Також слід зазначити, що важливим стає прогнозування властивостей нових структур; тому теоретичний підхід із розробленням і апробацією відповідних моделів уможливлює розв'язати багато із зазначених проблем, зокрема з'ясувати розмірні ефекти у спін-залежному розсіянні електронів у матеріялах чутливих елементів сенсорів. Націлена на вирішення відповідних питань дисертаційна робота пана Ю. О. Шкурудоди має виразну прикладну склерованість, оскільки досліджені тут плівкові системи мають перспективу застосування у багатофункціональних сенсорах та спін-вентильних приладах.

Враховуючи зазначене, дану дисертаційну роботу можна визнати актуальну з точки зору фізики функціональних елементів приладових структур. Додаткові покажчики її актуальності проявилися в тому, що наукові дослідження дисертанта виконувалися в рамках держбюджетних науково-дослідних робіт кафедри електроніки, загальної та прикладної фізики Сумського держуніверситету МОН України.

Співставлення тематики даної дисертаційної роботи була зумовлена й



метою досліджень, яка полягала, насамперед, в експериментальному встановленні загальних закономірностей впливу розмірних, температурних і концентраційних ефектів та елементного складу, структурно-фазового стану, умов термооброблення на магнеторезистивні та магнетні властивості приладових структур на основі Co, Fe, Fe_xNi_{100-x} та Cu, у з'ясуванні впливу на ці властивості фізичних процесів, які перебігають у шаруватих плівкових системах, де власне їх відбувається спін-залежне розсіяння електронів.

Отже, дисертація пана Ю. О. Шкурудоди має достатній ступінь опрацьованості своїх структурних елементів, повноти, поглибленості та конкретності, а його дисертаційна робота містить елементи *новизни*. Розв'язання задач, поставлених у даній роботі, уможливило одержання наступних нових і цікавих (з моєї точки зору) результатів.

1. За результатами електронно-мікроскопічних, електронографічних і мас-спектрометричних досліджень встановлено фазовий та елементний склади, проведено пошарову аналізу тришарових плівок на основі Fe_xNi_{100-x} і Cu та «псевдоспін-вентильних» структур на основі Co, Fe_xNi_{100-x} і Cu та Co, Fe і Cu з $d_{\text{феромагн}} = 20-40$ нм, $d_{\text{немагн}} = 5-20$ нм у широкому інтервалі концентрацій компонентів. Установлено, що ступені розчинності компонентів істотно впливають на структурно-фазовий стан плівкових зразків. Підбором конкретних магнетних і немагнетних металів чи то стопів та умов термооброблення можна одержати три- та багатошарові плівкові системи, в яких зберігається індивідуальність шарів. Також можливе утворення гранульованого стану після термооброблення три- та багатошарових плівкових систем у вихідному стані. Одержані результати дають можливість встановити умови термооброблення для систем із різним типом розчинності компонентів, які забезпечать максимальне значення ефекту гіантського магнетоопору (ГМО), що важливо з точки зору використання таких систем як функціональних елементів. Запропоновані моделі структури тришарових плівкових систем уможливлюють коректно обговорювати вплив умов термооброблення на величину ізотропного магнетоопору.

2. За результатами дослідження впливу температури відпалювання на величину ізотропного магнетоопору тришарових систем на основі Fe_xNi_{100-x} і Cu встановлено, що максимальне значення величини ГМО для свіжосконденсованих (1,2%) і відпалених за температури у 400 К (1%) плівкових систем спостерігається при 50 ат.% Ni та з $d_{\text{феромагн}} = 30-40$ нм і $d_{\text{немагн}} = 6$ нм. З'ясовано, що для плівок, відпалених за температури у 700 К, величина ізотропного МО лише зменшується при збільшенні концентрації Ni, змінюючись на анізотропний за характером при 40–50 ат.% Ni. Проведені дослідження уможливлюють встановити, що для системи Co/Cu/Fe із товщинами немагнетних прошарків $d_{\text{немагн}} = 6-15$ нм (та майже однаковими товщинами магнетних шарів) максимальна величина ефекту ГМО спостерігається після відпалювання при 700 К. Проведено класифікацію плівкових систем різних типів за експериментально вивченими польовими залежностями магнетоопору, причому з огляду на їх практичне застосування в сенсорній техніці як термостійких елементів сенсорів різноманітного функціонального призначення, терморезисторів, високочутливих елементів сенсорів температури і магнетного поля та контактних структур мікросхем.

3. Експериментально досліджено і теоретично проаналізовано із використанням феноменологічного підходу (резисторного та двострумового моделів) ефект гіантського магнетоопору в магнетно впорядкованій тришаровій плівці Co/Cu/Co. Показано, що для значень товщини d_{m2} покривного (верхньо-

го) магнетного шару, гранично малих порівняно з товщиною d_{m1} базового (нижнього) магнетного шару, ефект є мізерно малим. При виконанні нерівності $d_{m2} \ll d_{m1}$ опір покривного шару шунтується опором базового шару, тоді як при виконанні протилежної нерівності $d_{m2} > d_{m1}$ спостерігається протилежний ефект: опір покривного шару шунтує опір базового магнетного шару. Якщо ж товщини магнетних шарів співмірні за величиною ($d_{m2} \sim d_{m1}$), ефект шунтування відсутній, і величина гіантського магнетоопору сягає свого амплітудного значення. За результатами експериментального дослідження зазначених ефектів вперше запропоновано методу розрахунку параметра об'ємної асиметрії в розсіянні спін-поляризованих електронів і питомого опору електронів зі спином «униз», допускаючи, що питомий опір спінового каналу електронів зі спином «уверх» збігається з питомим опором немагнетного прошарку.

4. Експериментально та теоретично з використанням феноменологічного підходу проаналізовано ефект анізотропії гіантського магнетоопору в тришаровій магнетно впорядкованій плівці $\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x}/\Pi$ ($x \geq 50$). Показано, що у випадку, коли напрямок вектора густини струму j збігається з напрямком вектора локальної намагнетованості \mathbf{M} ($j \parallel \mathbf{M}$) у магнетних шарах, урахуванню анізотропії опору відповідає пониження величини ефекту ГМО, тоді як при взаємній перпендикулярності зазначених векторів у площині плівки ($j \perp \mathbf{M}$) величина гіантського магнетоопору збільшується.

5. За результатами експериментальних досліджень магнеторезистивних властивостей надтонких плівок Со та Fe і стопів на їх основі встановлено, що з переходом до структурно-несуцільних плівок відбувається перехід від анізотропного до ізотропного характеру магнетоопору, величина якого зростає до 0,5% для плівок Со та до 1% для плівок Fe. При цьому на польових залежностях МО відсутня гістереза і вони збігаються для поздовжньої та поперечної геометрії міряння.

Дисертація складається зі Вступу, шістьох розділів, загальних висновків, Списку використаних джерел та одного додатку.

У *Вступі* обґрунтовано актуальність теми дослідження, показано зв'язок роботи з науковими темами кафедри, визначено об'єкт, мету, завдання та методи дослідження, розкрито наукову новизну й практичне значення результатів роботи, особистий внесок автора в працях, опублікованих у співавторстві, охарактеризовано вірогідність, зазначено апробацію та впровадження результатів дисертації.

У *першому розділі*, що являє собою літературний огляд, на підґрунті використаної літератури систематизовано та проаналізовано дані про формування й властивості наномасштабних структур і матеріалів (в тому числі на основі багатокомпонентних систем). Таким матеріямам і структурам присвячено широкий ряд експериментальних і теоретичних досліджень, проте залишається низка питань, відповіді на які мають додати розуміння електронної структури, механізмів твердотільних реакцій, дифузійних процесів, фізичних і механічних явищ у них, уможливити створення нових сенсорних пристрій тощо. Розглянуто практичну застосовність плівкових матеріалів із спін-залежним розсіянням електронів провідності у спінtronіці, сенсорній техніці та мікроприладобудуванні.

Завдяки аналізі літературних даних щодо виконаних досліджень магнеторезистивних властивостей запропоновано нові варіанти приладових плівкових структур як чутливих елементів багатофункціональних сенсорів із

характеристиками, які мали б високу термічну стабільність або чутливість та малі температурний, концентраційний і польовий дрейфи параметрів.

До першого розділу є два непринципових зауваження.

1. В огляді не знайшли детального відображення моделі, які кількісно описують ефект ГМО.

2. Є певні недогляди редакційного характеру; так, в цьому розділі (та й Вступі і наступних розділах дисертації) застосовано не найкращу українськомовну фізичну термінологію й жаргонові словосполучення, наприклад, чомусь «температура плавлення» (замість «температура топлення»), «сплав» (а не «стоп»), «вісь легкої намагніченості (або намагнічування)» (замість «вісь легкого магнетування»), «вектор намагніченості» (а не «вектор намагнітованості»), «гранули, впроваджені у матрицю» (замість «гранули, втілені у матрицю»), «кристалічна гратка» (чи то «решітка», а не «кристалічна гратниця»), «Неелівська взаємодія» (замість «Неслева взаємодія»), «підкладка» (а не «підкладинка» чи то «підложка»), «розпилення» (замість «розпорощення»).

У другому розділі описано методи і методики одержання наноструктурованих плівкових матеріалів, дослідження (в тому числі *in situ*) їхньої кристалічної структури, фазового складу, дифузійних процесів, особливостей магнеторезистивних і магнетооптичних властивостей.

До другого розділу принципових зауважень немає.

Третій розділ присвячено ґрунтовному дослідженню елементного і структурно-фазового складу плівкових стопів на основі Co, Fe та Ni та тришарових плівкових систем. Зокрема, показано, що для плівкового стопу Fe_xNi_{100-x} характерними є концентраційні області, в яких стабілізуються фази пермалою (Ni_3Fe і $NiFe$) при концентрації атомів Fe до 60 ат.% та фаза α -Fe–Ni за концентрації Fe понад 60 ат.%. Показано, що ступені розчинності компонентів істотно впливають на структурно-фазовий стан тришарових плівкових зразків. Також можливе утворення ґранульованого стану після термооброблення три- та багатошарових плівкових систем у вихідному стані. Дисертантом запропоновано використовувати ряд структурних моделів для інтерпретації експериментальних результатів дослідження магнетних і магнеторезистивних властивостей функціональних матеріалів.

Стосовно третього розділу є чотири непринципових зауваження.

1. У дисертації не наведено і не проаналізовано фазову діяграму системи Fe–Co, що ускладнює характеризацію фазового складу тришарової системи Co/Cu/Fe.

2. У дисертації наведено розрахунок для складу, одержаного з масивної наважки стопу Co–Ni, однак, на жаль, відсутні розрахунки для Fe–Ni, і автор обмежився лише якісною оцінкою (при збільшенні вмісту Fe).

3. Тут стверджується, що залежність відношення інтенсивностей масспектрометричних піків близька до гіперболічної, однак це не було підтверджено числовими розрахунками.

4. У роботі визначено концентраційні профілі матеріалів, із яких складаються плівки. Проте, не було наведено результатів стосовно профілів розподілу домішкових атомів, що, напевне, виявляються методою ВІМС у плівках внаслідок наявності залишкових газів у вакуумній камері, часткового випаровування матеріалу тиглів, дифузійних процесів від підкладинки в плівку тощо.

Четвертий розділ стосується експериментального та теоретичного дослі-

джені магнеторезистивних властивостей мультишарів (а саме, магнетоопору та гігантського магнетоопору). Зокрема, тут одержано цікаві дані про вплив товщин як мідного прошарку, так і фазового складу феромагнетних шарів Fe_xNi_{100-x} та умов термооброблення на характер польової залежності й величину магнетоопору «псевдоспін-вентильних» структур. Автор роботи вказує на високу температурну стійкість гетерогенних плівкових матеріалів на основі Fe, Co, стопу Fe_xNi_{100-x} ($x > 60\%$), що уможливлює використовувати їх для створення функціональних елементів сенсорної техніки з прогнозуванням робочих параметрів і характеристик.

У цьому ж розділі запропоновано оригінальну симетричну «псевдоспін-вентильну» структуру (на основі сукупності нанорозмірних шарів кобальту, стопу Fe_xNi_{100-x} ($x = 50\%$) та міді) з поліпшеною функціональністю у магнетному полі; проаналізовано способи її термостабілізації.

Зазначу, що цікавими й новими є результати теоретичного дослідження ефекту ГМО у магнетній тришаровій плівці Co/Cu/Co.

До четвертого розділу є наступні непринципові зауваження.

1. Структурні, електро- та магнеторезистивні властивості плівкових матеріалів можуть залежати від виду підкладинок (монокристалічні вони, полікристалічні чи то аморфні), але ці обставини практично не розглядаються в дисертації при порівнянні результатів експериментів, одержаних для однотипних плівок на різних підкладинках.

2. При теоретичному обґрунтуванні розмірної залежності ГМО автор дисертації зосередив свою увагу лише на об'ємному механізмі спін-залежного розсіяння, залишивши поза увагою інтерфейсний механізм розсіяння електронів.

3. При одержанні асимптотичних співвідношень для граничних значень товщини покривного магнетного шару автор не провів порівняння їх з експериментально одержаними значеннями.

П'ятий розділ стосується вивчення магнетних властивостей наномасштабних плівкових матеріалів на основі феромагнетних і шляхетних металів. Оригінальним є встановлення зв'язку магнетоопору тришарових плівок зі зміною їхньої магнетної структури для систем $Fe_xNi_{100-x}/Cu/Fe_xNi_{100-x}$ ($x \geq 50\%$, $x \geq 20\%$) і $Fe_xNi_{100-x}/Cu/Co$ ($x \geq 50\%$, $x \geq 20\%$).

З'ясовано, що плівкові системи на основі Co, Fe, Fe_xNi_{100-x} і Cu характеризуються високою температурною стабільністю коерцитивної сили та поля наситу, високою чутливістю їхнього опору до магнетного поля, і це уможливлює використання їх у матеріалах конструкцій електронних пристрій.

Стосовно п'ятого розділу принципових зауважень немає, але, на жаль, тут при аналізі температурних залежностей коерцитивної сили не виокремлено неоднакові за характером внески в них від різних структурних дефектів плівки.

У цікавому шостому розділі наведено результати експериментальних досліджень електропровідності, магнеторезистивних властивостей і впливу температури та розмірних ефектів на електро- й магнеторезистивні властивості несуцільних за структурою плівок феромагнетних металів і стопів та композиційних плівкових матеріалів «феромагнетний метал-діелектрик». З'ясовано, що для свіжосконденсованих структурно несуцільних плівок Co та Fe спостерігаються ізотропні польові залежності, причому максимальна величина ізотропного магнетоопору спостерігається для свіжосконденсованих плівок Fe (з $d_{Fe} = 20$ нм) і складає 1%. Максимальні значення ізотроп-

ного МО спостерігаються в тому випадку, коли розмір острівців складає 3–5 нм, а ширина діелектричного бар’єру між ними дорівнює 1–3 нм. При збільшенні ефективної товщини плівок спостерігається анізотропний характер магнетоопору. Для гранулюваних структур на основі Co та SiO_x з часткою Co у 40–60% спостерігаються ізотропні польові залежності, зумовлені спін-залежним тунелюванням електронів між феромагнетними гранулами. Максимальна величина тунельного магнетоопору в магнетному полі у 0,7 Тл за кімнатної температури для свіжосконденсованих плівок складає 2,5% при поздовжній і поперечній геометріях.

Щодо шостого розділу є такі зауваження. У дисертації потрібно було б: 1) детально обговорити причини прояву ізотропного характеру магнетоопору при переході від суцільних до несуцільних за структурою плівок феромагнетних металів, а також 2) провести міряння й аналізу залежностей намагнітованості від температури та поля (зокрема, щоб з’ясувати вірогідність суперпарамагнетного стану несуцільних плівок Co та Fe).

Та сформульовані вище зауваження стосовно дисертації пана Ю. О. Шкурдоди почасти носять дискусійний характер і не можуть знизити загальної оцінки його дисертаційної роботи.

У цілому ця робота є самостійним і завершеним (в межах поставлених задач) кваліфікаційним дослідженням. Її автор одержав *оригінальні* та *трудомісткі* наукові результати. Теоретичні моделі ефекту ГМО у тришарових магнетних плівках типу Co/Cu/Co, яких застосовано в дисертаційній роботі, здаються мені цілком фізичними і забезпечують обґрунтованість сформульованих наукових висновків.

Вірогідність одержаних наукових даних забезпечується: застосуванням сучасних метод формування й оброблення плівкових матеріалів, задіянням комплексом експериментальних метод для дослідження процесів у плівкових матеріялах, що базується на сучасних приладах; аналізою експериментальних даних для різного типу плівкових систем.

Крім того, на користь коректності ряду результатів свідчать їхня узгодженість із відомими з літератури експериментальними даними (одержаними іншими дослідниками інакшими методами) та якісний збіг з наявними розрахунковими результатами (навіть у рамках інакших трактувань, але на основі моделів, адекватних щодо області явищ, які вивчаються).

Щодо практичної цінності маю зазначити, що одержані дані уможливлюють сформувати уявлення про механізми спін-залежного розсіяння електронів провідності, процеси фазоутворення та дифузії, поглиблюють розуміння фізичних процесів та явищ у багатошарових і гетерогенних матеріялах мікроелектроніки та сенсорної техніки для практично актуальних напомасштабних функціональних матеріалів. Результати дисертації можна використати для завбачення магнеторезистивних властивостей наноматеріалів, а також у впровадженні відповідних знань у навчальний процес при викладанні дисциплін «Магнетонеоднорідні матеріали в приладобудуванні» «Основи мікроелектроніки», «Наноматеріали і нанотехнології у приладобудуванні», «Прилади та методи дослідження плівкових матеріалів» (у Сумському держуніверситеті та ін. ВНЗ) при підготовці магістрів-спеціалістів із розроблення й експлуатації електронних приладів і пристроїв.

Одержані результати можна також рекомендувати для використання у наукових групах і лабораторіях плівкового матеріалознавства таких установ як ХНУ ім. В. Н. Каразіна, НТУУ «КПІ імені Ігоря Сікорського», НТУ «ХПІ», СумДУ МОН України та ННЦ «ХФТІ», ІПМ ім. І. М. Францевича,

ІФ, ІМФ ім. Г. В. Курдюмова НАН України. Фундаментальне значення дисертаційної роботи полягає у розвитку наукового напряму досліджень фізичних процесів у плівкових матеріялах зі спін-залежним розсіянням електронів і впливу їх на електричні, магнеторезистивні й магнетооптичні властивості.

Дисертацію побудовано логічно, в основному написано науковою українською мовою та структуровано відповідно до вимог ДАК МОН України щодо оформлення дисертацій.

Результати дисертаційної роботи викладено в опублікованих працях, принаймні, у 26 статтях у фахових наукових журналах і збірниках наукових праць та колективній монографії, оприлюднено на багатьох міжнародних конференціях.

Вміст і основні положення дисертації цілком і вірно відображені в авторефераті дисертації. Хоча маю зазначити, що тут також часто застосовано не найкращу українськомовну фізичну термінологію та жаргонові словосполучення, наприклад, «протікання процесів (або реакцій)» замість «перебіг процесів (реакцій)».

ВИСНОВОК

Отже, дисертаційна робота пана Ю. О. Шкурдоди є завершеним (у межах поставлених задач) науковим дослідженням; її виконано на рівні сучасної експериментальної фізики наноструктурованих і нанорозмірних плівкових систем і, певна річ, є корисним кроком у з'ясуванні впливу дифузійних процесів, фазоутворення, розмірних і концентраційних ефектів на властивості чутливих елементів плівкових сенсорів на основі магнетних і немагнетних матеріалів.

За актуальністю вибраної тематики, науковою новизною та значимістю одержаних результатів, їх обсягом, вірогідністю та ступенем обґрунтованості сформульованих наукових висновків і рекомендацій, повнотою їх викладу в опублікованих працях дисертаційна робота «Електрофізичні і магніто-резистивні властивості несиметричних та гранульованих систем в умовах протікання твердофазних реакцій» задовольняє встановленим критеріям ДАК МОН України щодо дисертацій на здобуття наукового ступеня доктора наук, а саме, пп. 9, 10, 12, 13 «Порядку присудження наукових ступенів», затвердженого постановою Кабінету Міністрів України №567 від 24.07.2013 р. (зі змінами, внесеними згідно з постановами Кабінету Міністрів України №656 від 19.08.2015, №1159 від 30.12.2015 та №567 від 27.07.2016). Тому я вважаю, що автор дисертації, пан Юрій Олексійович Шкурдода, заслуговує на присудження йому наукового ступеня доктора фізико-математичних наук із спеціальністю 01.04.01 – фізики приладів, елементів і систем.

Заступник директора з наукової роботи
Інституту металофізики
ім. Г. В. Курдюмова НАН України,
чл.-кор. НАН України, д.ф.-м.н., проф.

В. А. Татаренко

