

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ  
СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ  
Факультет електроніки та інформаційних технологій

Кафедра електроніки,  
загальної та прикладної фізики

Кваліфікаційна робота бакалавра

**ВИСОКОЕНТРОПІЙНІ ПЛІВКОВІ СПЛАВИ ЯК ФУНКЦІОНАЛЬНІ  
МАТЕРІАЛИ СЕНСОРНОЇ ЕЛЕКТРОНІКИ**

Студент гр.ЕП-71

А.К. Рилова

Науковий керівник,

д-р фіз.-мат. наук, професор

І.Ю. Проценко

Завідувач кафедри ЕЗПФ,

д-р фіз.-мат. наук, професор

І.Ю.Проценко

Суми 2021





## ЗМІСТ

<b>Вступ.....</b>	<b>5</b>
<b>РОЗДІЛ 1. ВИСОКОЕНТРОПІЙНІ ПЛІВКОВІ СПЛАВИ ЯК СУЧАСНІ ФУНКЦІОНАЛЬНІ МАТЕРІАЛИ.....</b>	<b>6</b>
1.1 Загальна характеристика ВЕС.....	6
1.2 Кристалічна структура і властивості ВЕС .....	9
<b>РОЗДІЛ 2 МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ.....</b>	<b>12</b>
1.1 Методика формування плівкових зразків.....	12
1.2 Методика дослідження кристалічної структури і фазового складу.....	14
1.3 Методика вимірювання електрофізичних та магніторезистивних властивостей .....	16
<b>РОЗДІЛ 3. КРИСТАЛІЧНА СТРУКТУРА ТА ФІЗИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ВИСОКОЕНТРОПІЙНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ.....</b>	<b>19</b>
2.1 Фазовий склад.....	19
2.2 Електрофізичні та магніторезистивні властивості.....	21
2.3 Кореляція між фізичними властивостями та ступенем ентропійності високоентропійних плівкових сплавів.....	27
<b>ВИСНОВКИ.....</b>	<b>32</b>
<b>СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ.....</b>	<b>33</b>

## ВСТУП

Розроблений близько десяти років тому новий клас металевих з'єднань, так званих високоентропійних сплавів (ВЕС) – це унікальний клас багатокомпонентних функціональних матеріалів [1-3]. ВЕС містять не менш 5 основних металевих елементів, атомний відсоток кожного з яких складає від 5 до 35%. В отриманих з'єднаннях відбувається формування однофазного стабільного твердого розчину заміщення (переважно ГЦК- або ОЦК-гратки), який є одночасно термодинамічно стійким [4]. Причина цього – висока ентропія змішування, яка забезпечує стабілізацію утворення твердого розчину і запобігає формування інтерметалідних фаз у процесі кристалізації [5]. На даному етапі вивчають лише фізико-механічні властивості та структуру ВЕС у вигляді покріттів мікронної товщини, для отримання яких використовується магнетронне або дугове розпилення масивних дисків.

У 2016 році на кафедрі прикладної фізики Сумського державного університету були започатковані дослідження фазового складу, електрофізичних і магніторезистивних властивостей багатокомпонентних плівкових ВЕС товщиною до 100 нм. Було використано новий підхід до формування ВЕС: методика конденсації дозволила регулювати елементний склад зразків, оскільки можна конденсувати фіксовану масу того чи іншого металу; у випадку плівкових матеріалів можна спостерігати ряд нових явищ і ефектів, які не мають місця в масивних покриттях; методи отримання плівкових сплавів економічно не затратні. Усе вищевказане обумовлює актуальність даної роботи.

Мета переддипломної практики полягала в полягала в аналізі літературних даних та проведенні досліджень електрофізичних та магніторезистивних властивостей високоентропійних плівкових сплавів з точки зору можливості їх практичного застосування в сенсорній електроніці.

Результати роботи представлені на Міжнародній конференції студентів і молодих вчених «Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2021» (м.Суми).

# Розділ 1

## ВИСОКОЕНТРОПІЙНІ ПЛІВКОВІ СПЛАВИ ЯК СУЧАСНІ ФУНКЦІОНАЛЬНІ МАТЕРІАЛИ

### 1.1 Загальна характеристика ВЕС

Формування однофазного твердого розчину заміщення, замість формування багатофазного з'єднання, суперечить правилу фаз Гіббса, яке визначає кількість фаз, які знаходяться в рівновазі залежно від кількості компонент, а саме:

$$P = C + 1 - F, \quad (1.1)$$

де  $P$  – кількість фаз у системі, що знаходитьться у рівновазі;

$C$  – кількість компонент;

$F$  – максимальне число термодинамічних ступенів свободи.

Однак дане правило не діє у випадку високоентропійних сплавів, тому що в їхньому випадку формування фазово-структурного складу регулюється ентропією змішування. Згідно постулатів термодинаміки, формування твердого розчину в речовині відбувається за рахунок мінімуму вільної енергії системи. Однак, це також вимагає високої ентропії з'єднання у вихідному, і рідкому стані, для стабілізації сформованого твердого розчину, і запобігання утворення інтерметалідів. Величина конфігураційної ентропії змішування описується співвідношенням Больцмана у такому виді:

$$\Delta S_{3M} = -R \cdot \sum_{i=1}^n c_i \ln c_i, \quad (1.2)$$

де  $\Delta S_{3M}$  – конфігураційна ентропія змішування;

$R$  – універсальна газова постійна;  $c_i$  – концентрація компонент.

Таким чином, конфігураційна ентропія системи з ростом кількості складових елементів збільшується (рис. 1.1).

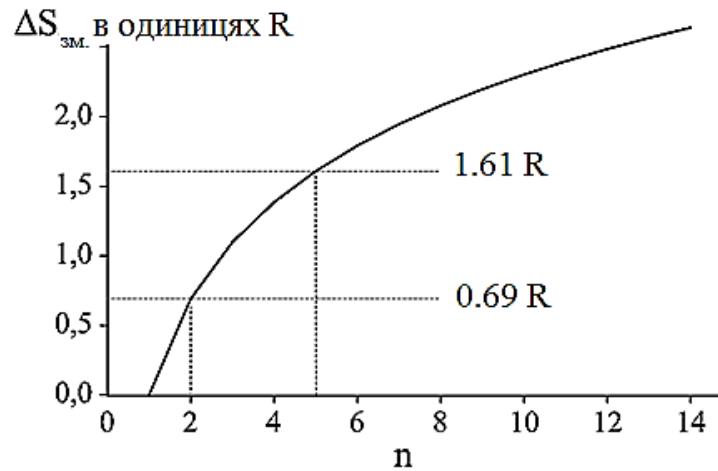


Рис. 1.1. Ентропія змішування еквімолярного сплаву залежно від кількості компонент [5]

Кількісним параметром, що описує вплив ентропії та ентальпії змішування, і також температури плавлення на утворення твердого розчину, є коефіцієнт  $\Omega$  [6, 7].

$$\Omega = \frac{T_m \Delta S_{mix}}{|\Delta H_{mix}|}, \quad (1.3)$$

де  $T_m$  – середня температура плавлення сплаву з  $n$ -елементами;

$\Delta H_{mix}$  – ентальпія змішування.

Середня температура плавлення описується наступним спiввiдношенням [6, 7]:

$$T_m = \sum_{i=1}^n c_i (T_m)_i, \quad (1.4)$$

де  $(T_m)_i$  – точка плавлення  $i$ -го елементу.

Викривлення кристалічних граток у ВЕС відбувається за рахунок змішування атомів різних радіусів. На відміну від традиційних сплавів, де можна чітко

розділити розчинники, і розчинені атоми, у випадку ВЕС атоми складових елементів мають однакову ймовірність зайняти той або інший вузол у кристалічній гратці сформованого неупорядкованого розчину.

Параметр  $\delta$  [8] використовується для опису впливу різниці атомних радіусів складових елементів, і він дорівнює:

$$\delta = \sqrt{\sum_{i=1, i \neq j}^n c_i \left( 1 - \frac{r_i}{\bar{r}} \right)^2}, \quad (1.5)$$

де  $r_i$  – атомний радіус  $i$ -го компоненту;

$c_i$  – концентрація  $i$ -го компоненту;

$\bar{r}$  – середній атомний радіус, який визначається за формулою:

$$\bar{r} = \sum_{i=1}^n c_i r_i. \quad (1.6)$$

Той факт, що кожен атом складового елемента високоентропійного сплаву може з однаковою ймовірністю зайняти той або інший вузол у кристалічній гратці, впливає на кінетику дифузії. Різнорідність атомів приводить до зміни потенціальної енергії між вузлами кристалічних граток, а її флюктуації потенціальної енергії знижують дифузію елементів у матриці.

Таким чином, у ВЕС спостерігається мінімальний коефіцієнт дифузії. Це впливає на безліч факторів, наприклад – ріст зерен відбувається повільніше, збільшується міцність при термічній обробці, більша ймовірність формування наноструктур і нанорозмірних формувань [1–3].

В останні роки велика увага була приділена дослідженням механічних та трибологічних властивостей ВЕС у вигляді покриттів мікронної товщини [9–13]. Ці роботи викликають велику зацікавленість у дослідників ВЕС, але, не дивлячись на велику увагу до публікацій подібної тематики, необхідно констатувати, що ці дослідження фактично мають відношення тільки до масивних зразків.

## 1.2 Кристалічна структура і властивості ВЕС

Огляд літературних даних (див., наприклад, [14, 15]) містить широкий спектр експериментальних даних стосовно кристалічної структури плівкових ВЕС, отриманих іонним розпиленням. У випадку еквімолярного плівкового ВЕСу AlCrMoTaTiZr формується одна ГЦК фаза, в той час як у сплаві AlCoCrCuFeNi – дві фази ГЦК і ОЦК, причому при збільшенні концентрації Al відбувається перехід ГЦК → ОЦК, що не прокоментовано авторами, оскільки більш ймовірним повинен бути перехід ОЦК → ГЦК. Автори [14] пояснюють причину ГЦК → ОЦК переходу збільшенням дисторсії ГЦК → ОЦК переходу збільшенням дисторсії ГЦК решітки при збільшенні концентрації атомів Al. Рисунок 1.2 із роботи [14] ілюструє відміну в гомогенності вихідного сплаву і тонких плівок. У цій же роботі представлені результати інших авторів стосовно впливу атомів Ge або In на мікроструктуру тонких плівок CoCrCuFeNi. Було виявлено, що атоми і Ge, і In спричиняють фазовий перехід від ГЦК не до ОЦК, а до аморфної фази. Ця обставина до великої міри врахована нами [31] при дослідженні магніторезистивних властивостей низькоентропійних сплавів на основі Fe і Pd або Pt з добавкою атомів Ge. Крім цього, у роботі [14] представлені результати порівняльного аналізу механічних і електрохімічних властивостей покріттів і тонких плівок ВЕСів одинакового хімічного складу. Автори [14] також відмічають суттєву відміну фізико-механічних властивостей покріттів і плівкових матеріалів.

Авторами [15] розглядаються варіанти формування тонкоплівкових структур при перемішуванні трьох компонент однакової концентрації (рис.1.2). У роботі [16] акцентується увага на тому, що сплави, що мають структуру простого твердого розчину, можуть мати ряд цікавих властивостей: висока міцність, жаростійкість, пластичність і корозійна стійкість, невеликі значення густини у поєднанні з високою твердістю. Це робить їх привабливими для дослідження та використання у різних галузях промисловості.

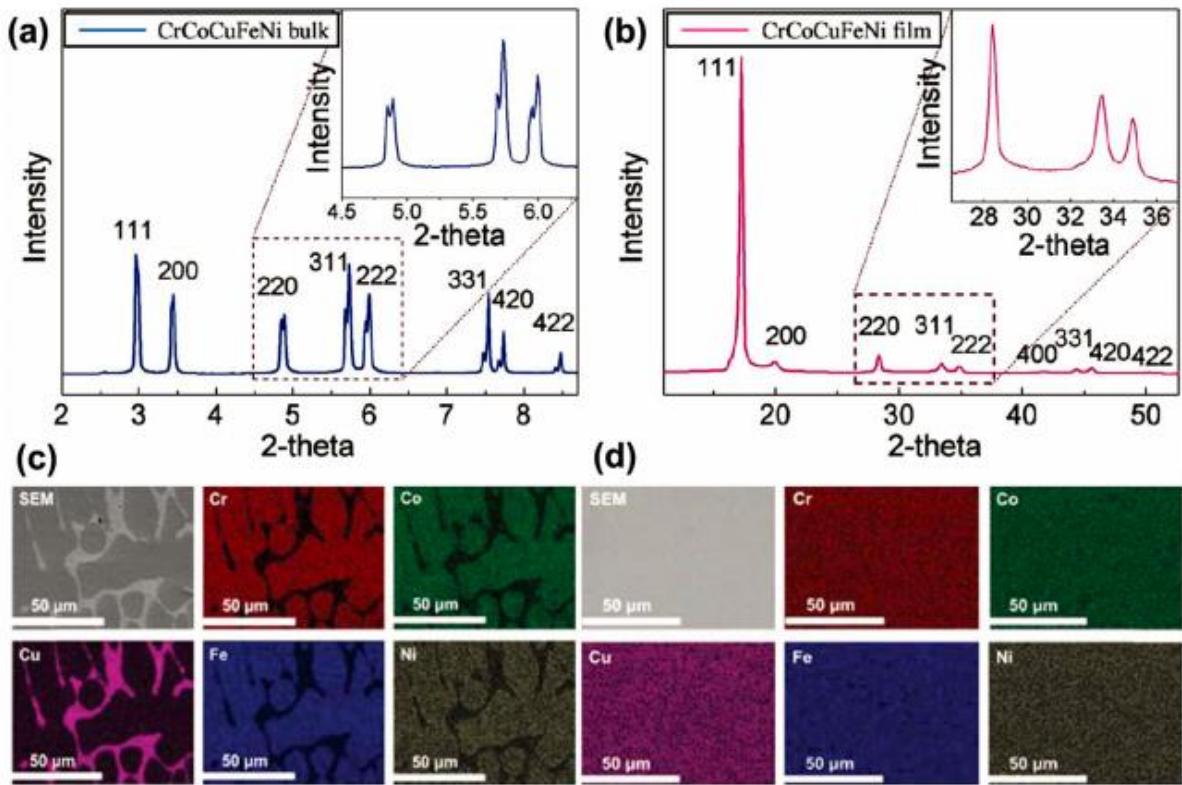


Рис.1.2. Дифузійні картини від сплаву у вихідному стані CrCoCuFeNi (а) і плівки CrCoCuFeNi (б), карта розповсюдження елементів у сплаві (с) і плівці ВЕС (д). Із відкритого інтернет ресурсу [14]

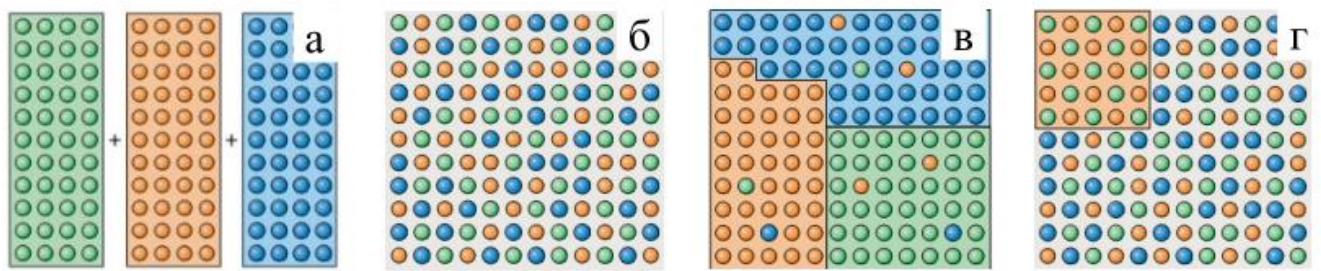


Рис.1.3. Варіанти утворення структур при перемішуванні трьох компонент: вихідний стан (а), простий твердий розчин (б), твердий розчин різного фазового складу (евтектика) (в) та інтерметалідна сполука у твердому розчині (г) [15]

Так, наприклад, сплави CoCrFeNi і CoCrFeNiMn проявляють високу пластичність при кімнатній температурі ( $\approx 40\%$ ), але мають низьку межу плинності ( $\approx 200$  МПа). Сплав CoCrFeNi має набагато кращі корозійні властивості у порівнянні зі сталлю 304L. Не менш цікавими ВЕС є сплави VNbMoTaW, NbMoTaW, TaNbHfZrTi, і NbTiVZr на основі тугоплавких металів, які мають однофазну структуру твердого розчину з ОЦК кристалічною решіткою. Сплави системи VNbMoTaW і NbMoTaW, на відміну від CoCrFeNiMn, мають високі жаростійкі властивості.

Механічні випробування сплавів на стиск при температурі 1600 °C показали високі значення межі текучості і межі міцності: 477 МПа і 479 МПа у сплаві VNbMoTaW, а у NbMoTaW – 405 МПа і 600 МПа, відповідно. Високі механічні властивості можна пояснити здатністю ентропії змішування до блокування дифузії між елементами. На відміну від твердих розчинів та інтерметалідних з'єднань, аморфний сплав має невпорядковану і некристалічну атомну структуру.

Таким чином, високоентропійні сплави можуть мати структуру на основі простих твердих розчинів і складної структури. Як було показано, залежно від складу і мікроструктури ВЕС мають великий потенціал для використання як жароміцніх матеріалів, покриттів, що вимагають високої твердості і високої зносостійкості, і корозійностійких матеріалів з високою міцністю.

## Розділ 2. МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

### 2.1 Методика формування плівкових зразків

Для формування плівкових матеріалів різного ступеня ентропійності на основі Fe, Ni, Co, Cu, Al, Ag і Cr використовувалась вакуумна установка, представлена на рис.2.1. Пошарова або одночасна конденсація плівок проводилась з використанням випарників двох типів: молібденових човників або «гусариків» та електронно-променевих гармат.

Плівкові матеріали формувалися шляхом варіювання швидкості конденсації ( $\omega$ ), температури підкладки ( $T_n = 300 - 500$  K) і температури відпалювання ( $T_e = 300 - 900$  K). Випарування проводилося електронно-променевим (Co) та терморезистивним (Fe, Ni, Cr, Al, Cu і Ag) методами, товщина окремих шарів ( $d$ ) варіювалась від 10 до 30 нм.

Авторка роботи протягом 2018 – 2020 років була виконавцем держбюджетної науково-дослідної тематики «Фазовий склад, електрофізичні та магніторезистивні властивості багатокомпонентних (високоентропійних) плівкових сплавів» (отримувала зразки, вимірювала електрофізичні і магніторезистивні властивості).

Час відпалювання при максимальній температурі складав 15 хвилин, а швидкість охолодження 3 K/хв. У робочій вакуумній камері знаходились пристрій для формування плівкових матеріалів та вивчення їх властивостей. З використанням цифрових мультиметрів UT70D та UT70B контролювалися електричний опір (точність  $\pm 0,05\%$ ) плівок і температура (точність  $\pm 1$  K) підкладки відповідно. Використовувалась хромель – алюмелева термопара.

Експериментальні дані з мультиметрів через інтерфейс RS232 (RS485) передавалися на комп’ютер. Товщини плівок контролювалися *in situ* методом кварцового резонатора (точність 10 %), для чого використовувалися промисловий

резонатор типу РГ-08 з частотою 10 МГц, генератор електричних коливань, схему якого та частотомір ЧЗ-54.

Одночасна конденсація металів проводилась при окремому розташуванні випарників, підкладок та датчиків товщини (рис. 1.2, а). На позиції рис. 1.2, б представлена схема розміщення випарників, яка дозволяє здійснювати як пошарову, так і одночасну конденсацію зразків.

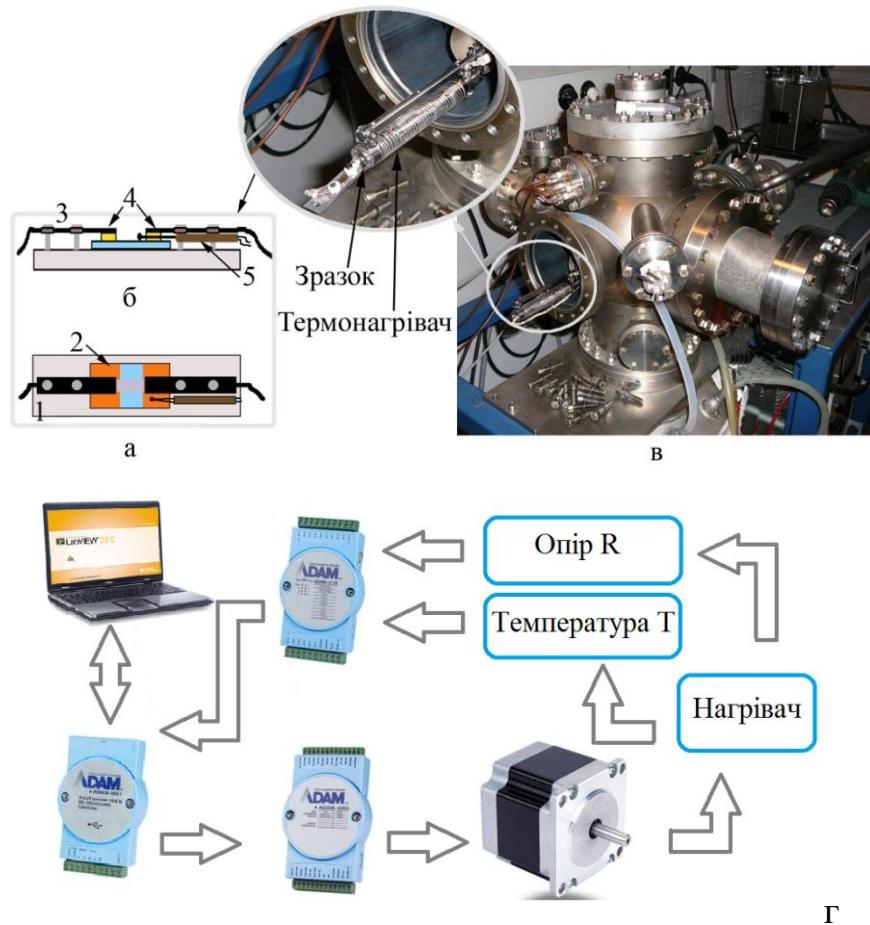


Рис.2.1. Схематичне зображення (а – вид згори, б – збоку); в – зовнішній вигляд установки для відпалювання плівкових ВЕС зразків: 1 – підкладка-столик; 2 – зразок; 3 – гвинти для закріплення притискних контактів 4; 5 – термопара; г – схема автоматизованої системи для вимірювання термічного коефіцієнта опору

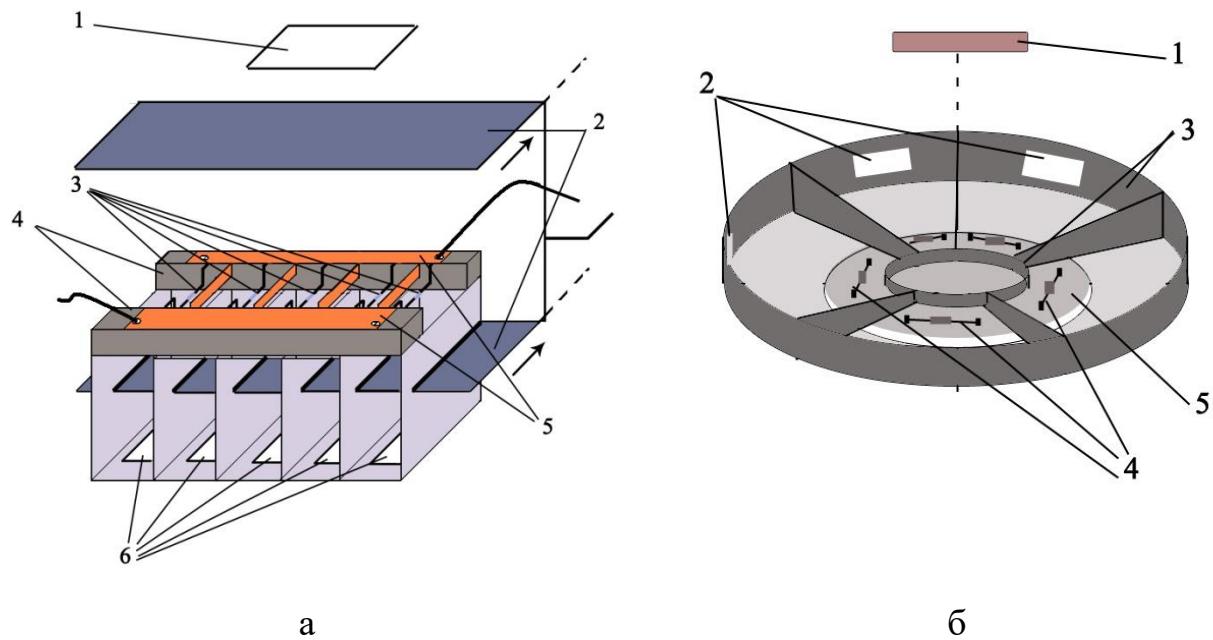


Рис.2.2. Конструкція систем випарників для одночасної конденсації (а):  
1 – підкладка; 2 – суміщені рухливі екрані; 3 – вольфрамові випарники; 4 – керамічні ізолятори; 5 – металеві контакти для підведення напруги до випарників; 6 – свідки для визначення товщини окремих компонентів ВЕС інтерферометричним методом; конструкція випарників для одночасної і пошарової конденсації (б): 1 – підкладка; 2 – свідки для вимірювання товщини; 3 – система суміщених екранів; 4 – вольфрамові випарники; вольфрамові випарники; 5 – керамічний ізолятор

## 2.2 Методика дослідження кристалічної структури і фазового складу

Дослідження фазового складу здійснювалося методом електронографії та просвічутої електронної мікроскопії (прилад ПЕМ-125К).

Квадратичні форми для кристалітів кубічної та гексагональної сингонії мають такий вигляд [17]:

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a_{hkl}^2}, \quad a_{hkl} = d_{hkl} \sqrt{h^2 + k^2 + l^2},$$

$$\frac{l}{d_{hkl}^2} = \frac{4}{3} \cdot \frac{h^2 + kh + k^2}{a_{hkl}^2} + \frac{l^2}{c_{hkl}^2}, \quad a_{hko} = \frac{2}{\sqrt{3}} d_{hko} \sqrt{h^2 + kh + k^2}, \quad c_{00l} = ld_{00l},$$

де  $d_{hkl}$  – міжплощинна відстань;

$h, k, l$  – індекси Міллера;

$a_{hkl}$  і  $c_{hkl}$  – параметри кристалічних решіток у межах відповідних сингоній.

Як еталон використовували відпалену плівку Al товщиною  $d = 30 - 40$  нм, що забезпечувало точність вимірювання міжплощинних відстаней  $\Delta d_{hkl} = \pm(10^{-3} - 10^{-4})$  нм. Для визначення хімічного складу плікових систем і співвідношення концентрацій елементів в них був використаний метод енергодисперсійного спектрального аналізу з використанням растрового електронного мікроскопу (SEO- SEM Inspect 950-B) із ЕДС приставкою. На основі спектра були визначалися положення піка на енергетичній шкалі, яке відповідало певному елементу (якісний аналіз). За значеннями інтенсивності піків, що пропорційні концентрації атомів, проводився кількісний аналіз елементного складу зразка.

## 2.3 Методика вимірювання електрофізичних і магніторезистиних властивостей

Формування багатокомпонентних плікових ВЕС проводилось методами пошарової або одночасної конденсації 5-6-ти металів на підкладки (П) із ситалу або

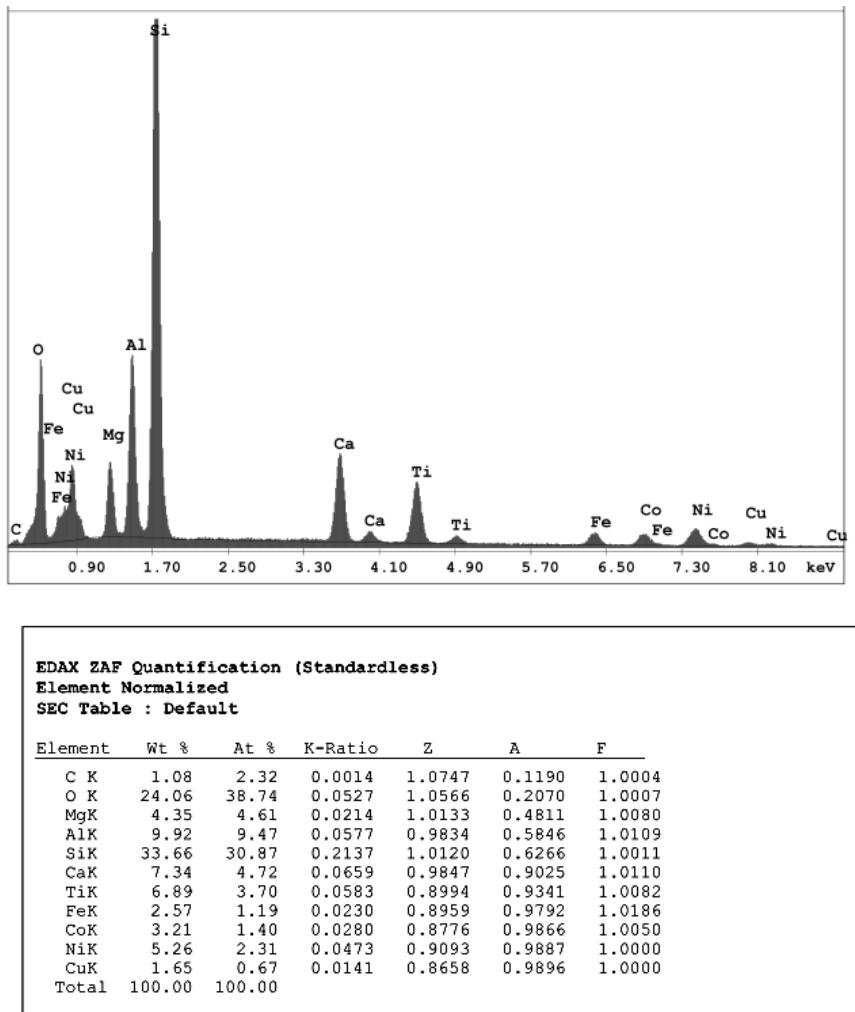


Рис.1.3. ЕДС спектри від плівкового ВЕС Cu(5.5)/Ni(5.5)/Fe(5.5)/Co(5)/Al(8)/П

$\text{SiO}_2/\text{Si}$  із застосуванням випарників двох типів: молібденових човників або електронно-променевих гармат.

Температура підкладки  $T_{\text{п}} = 300 - 500$  К, температура відпалювання  $T_{\text{в}} = 300 - 900$  К. Випарування чистих металів (чистота 99,9%) проводилось електронно-променевим (Co) та терморезистивним (Fe, Ni, Cr, Al, Cu) методами, товщина окремих шарів при пошаровій конденсації змінювалась від 10 до 30 нм. Швидкість випарування металів електронно-променевими гарматами варіювалась від 0,1 до 10 нм/хв. Швидкість осадження досліджуваних зразків для кожного металу в процесі експерименту підбиралася індивідуально і становила 3-5 нм/хв.

Товщина осаджених металів (окрім шарів при пошаровій конденсації та загальної – при одночасній конденсації) контролювалася “*in situ*” методом кварцового резонатора. Частота вихідного сигналу вимірювалась частотоміром побудованим на мікроконтроллері ATmega 328, який має можливість передачі даних на персональний комп’ютер через послідовний інтерфейс USB. Для кращої візуалізації та контролю товщини металів використовувалось програмне забезпечення у середовищі програмування Arduino.

Дослідження температурної залежності питомого опору, з метою подальшого аналізу температурної залежності термічного коефіцієнту опору (ТКО) високоентропійних плівкових сплавів проводилося у вакуумній камері установки ВУП-5М при тиску газів залишкової атмосфери  $p \leq 10^{-4}$  Па. Як нагрівач використовувалася вольфрамова спіраль з дроту товщиною 0,3 мм або галогенна лампочка потужністю 100 Вт, що розміщалася у корпусі з подвійним екрануванням. Використання електричних контактів телескопічного типу дало можливість проводити вимірювання електрофізичних властивостей без використання контактних майданчиків та додатково зменшити теплові втрати, які виникають при використанні громіздких контактів прижимного типу (рис. 2.4).

Головною вимогою до зразків було чітке дотримання їх геометричних розмірів, що було реалізовано шляхом використання масок, виготовлених з високою точністю із нержавіючої сталі. Геометричні розміри масок для дослідження температурної залежності електричного опору становили  $1 \times 10$  мм.

Термообробка зразків проводилася протягом декількох циклів «нагрівання↔охолодження» у автоматизованому режимі, який дозволив здійснювати контроль швидкості нагрівання зразків, проводити запис та обробку експериментальних даних (опір та температура). Для реалізації автоматизованого режиму використовувався програмно-апаратний комплекс, програмне забезпечення якого для керування експериментальним обладнанням розроблено у середовищі графічного програмування LabVIEW. Програма побудована у стилі багатовіконного

інтерфейсу. Вимірювання електричного опору проводилось за чотирьохточковою схемою з використанням 8 каналних 16 бітних сигма-дельта АЦП ADAM-4018 і ADAM-4118.

Отримання температурної залежності питомого опору і розрахунок ТКО плівкових ВЕС здійснювалось в автоматичному режимі (рис.2.1) за двохточковою схемою. Як приклад на рис. 1.5 приведено експериментальні температурні залежності  $\rho$  і величини диференціального термічного коефіцієнту опору  $\beta$ , отримані для середньоентропійних двокомпонентних плівок на основі Ni і Cr (рис. 2.5) при загальній товщині 60 нм. Відмітимо, що вони мають вигляд, типовий для металевих плівок, оскільки для них фіксується збільшення питомого опору та зменшення ТКО при зростанні температури. Дослідження терморезистивних властивостей плівок показують, що дисперсність структури, домішкові фази і твердофазні реакції впливають на характер температурної залежності питомого опору та ТКО.

Розрахунок інтегрального  $\beta$  і диференціального  $\beta_{\Delta}$  значень ТКО здійснювався за кривою охолодження останнього терmostабілізаційного циклу на основі експериментальних залежностей  $R(T)$  або  $\rho(T)$ , відповідно, за співвідношеннями:

$$\beta = \frac{1}{R} \frac{\Delta R}{\Delta T} \quad \text{або} \quad \beta = \frac{1}{\rho} \frac{\Delta \rho}{\Delta T}$$

$$\text{та} \quad \beta_{\Delta} = \frac{1}{R_i} \cdot \frac{dR}{dT} \quad \text{або} \quad \beta_{\Delta} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T}, \quad (1.7)$$

де  $\Delta T$  або  $dT$  – температурний інтервал.

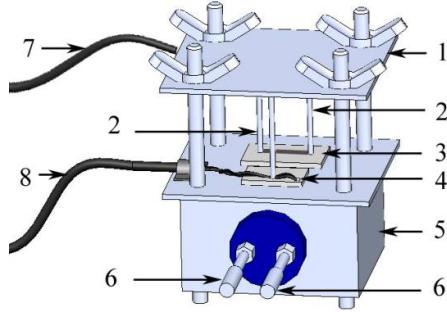


Рис.2.4. Пристрій для вимірювання опору і ТКО: 1 – тримач електричних контактів для вимірювання опору; 2 – електричні контакти телескопічного типу; 3 – підкладка; 4 – термопара; 5, 6 – корпус і контакти нагрівача; 7, 8 – виводи для вимірювання опору і температури відповідно

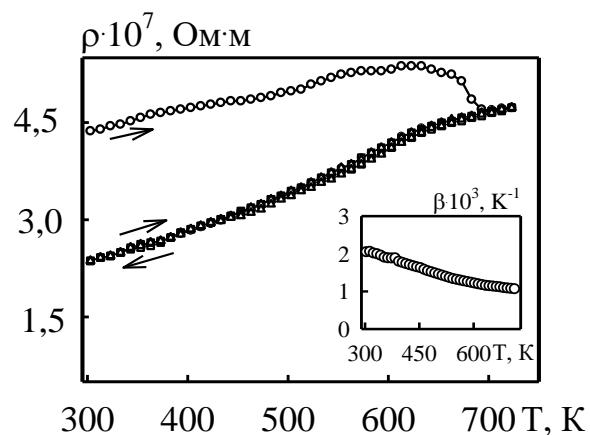


Рис.2.5. Приклад температурної залежності питомого опору і диференціального ТКО (вставка) для плівкових систем на основі Ni і Cr загальною товщиною 60 нм

### Розділ 3.

## КРИСТАЛІЧНА СТРУКТУРА, ЕЛЕКТРОФІЗИЧНІ ТА МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ ВИСОКОЕНТРОПІЙНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ

### 3.1 Фазовий склад

На рис. 3.1 наведені приклади типової дифракційної картини і мікроструктура плівкових зразків у невідпаленому і відпаленому до 800К стані. Слід відмітити, що багатокомпонентні плівкові системи на основі Fe, Co, Al, Ni та Cu мають нееквіатомний склад і, значить, дещо різну концентрацію магнітних компонент. Це проявляється у деякі відмінні мікроструктури як у вихідному стані, так і після термообробки (порівняти позиції на рис.3.2).

Дифракційні дослідження вказують на те, що у плівкових ВЕС основними фазами можуть бути ГЦК фази на основі Cu із параметром  $a = 0.3604 - 0.3650$  нм або  $a = 0.4016 - 0.4050$  нм при надлишку Al в сплаві. У першому випадку поряд із лініями від базової ГЦК фази спостерігаються сліди фази із параметром решітки близьким до параметра  $a$ -Fe або ОЦК Cr, яка трактується як твердий розчин  $a$ -Fe(Cr). Інколи спостерігаються сліди іншої фази, яку ми трактуємо як інтерметалід NiAl. Мікрочастинки темного контрасту (ми їх будемо називати квазігранулами), на наш погляд, мають магнітну природу і відіграють важливу роль в електрофізичних і магніторезистивних властивостях. На таких квазігранулах може відбуватись спін-залежне розсіювання електронів, що є необхідною умовою реалізації гіганського магнітного опору (ГМО).

Той факт, що у нашому випадку, відпалені ВЕСи мають фактично лише ГЦК – фазу можна пояснити ефективними процесами перемішування компонент і гомогенізації фазового складу при наших методиках формування плівкових зразків.

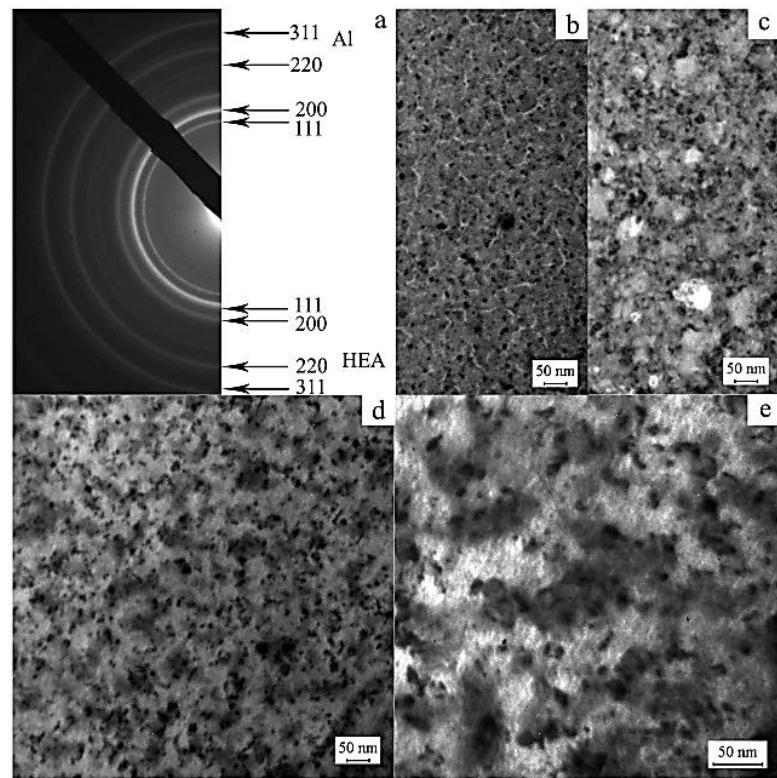


Рис.3.1. Дифракційні картини (а) і мікроструктура плівкових систем  $\text{Fe}(22)/\text{Co}(17)/\text{Al}(12)/\text{Ni}(10)/\text{Cu}(13)/\Pi$  (б,с) та  $\text{Fe}(18)/\text{Co}(12)/\text{Al}(15)/\text{Ni}(17)/\text{Cu}(17)/\Pi$  (д, е) у невідпаленому (а,б,д) і відпаленому до 800 К стані (с, е). На позиції (а) показана дифракційна картина від ВЕСу із додатковими лініями від еталону у вигляді плівки Al

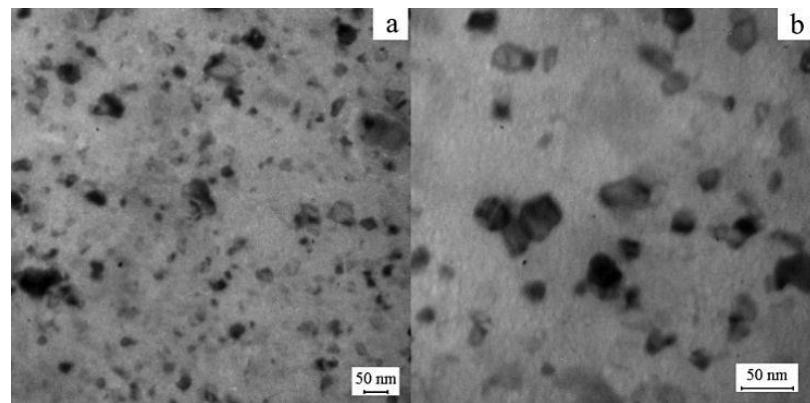


Рис.3.2. Мікроструктура плівки  $\text{Fe}(14)/\text{Co}(17)/\text{Al}(21)/\text{Ni}(15)/\text{Cu}(7)/\Pi$  у невідпаленому (а) і відпаленому (б) станах

### 3.2 Електрофізичні та магніторезистивні властивості

Результати попередніх досліджень електрофізичних і магніторезистивних властивостей високоентропійних плівкових сплавів у порівнянні із низько- та середньоентропійними наведені нами в роботах [18 –21]. Такого роду дані служать нам додатковим аргументами стосовно висновку про можливе утворення феромагнітних частинок, на яких можливе спін-залежне розсіювання електронів.

На прикладі плівки Fe(32)/Co(17)/Al(12)/Ni(10)/Cu(13)/П рисунок 3.3 ілюструє типову температурну залежність питомого опору ( $\rho$ ) і ТКО ( $\beta$ ). Немонотонний характер залежності  $\rho$  при відпалюванні (поява двох максимумів) пояснюється процесами упорядкування структури та заликовуванням дефектів кристалічної будови. При охолодженні спостерігається лінійна залежність  $\rho(T)$  і типова залежність  $\beta(T) \sim 1/T$ . Величина ТКО при  $T=300\text{K}$  змінюється у межах  $(1,8 - 3,0) \cdot 10^{-3}\text{K}^{-1}$  (рис. 3.3 і 3.4, вставка).

Таблиця 3.1 – ТКО для плівкових ВЕС при  $T = 300\text{ K}$

Зразок ( $d$ , нм)	$d$ , нм	Концентрація, ат.%	$\beta \cdot 10^3$ , $\text{K}^{-1}$
Al(20)/Co(34)/Fe(32)/Ni(38)/Cu(31)/П	155	18/22/23/23/13/П	3,00
Cu(17)/Ni(17)/Al(15)/Co(12)/Fe(28)/П	89	20/21/12/15/32/П	3,64
Fe(28)/Co(12)/Al(15)/Ni(17)/Cu(17)/П	89	33/15/12/21/19/П	3,24
Fe(32)/Co(17)/Al(12)/Ni(10)/Cu(13)/П	84	38/22/10/13/17/П	3,00
Fe(14)/Co(17)/Al(21)/Ni(15)/Cu(7)/П	74	20/26/21/23/10/П	2,57
Cr(8)/Al(5)/Co(7)/Cu(5)/Ni(7)/Fe(7)/П	39	19/8/21/12/19/19/П	1,80
Al(4)/Cu(3)/Co(5)/Cr(5)/Fe(5)/П	22	11/13/19/20/19/17/11/П	2,00

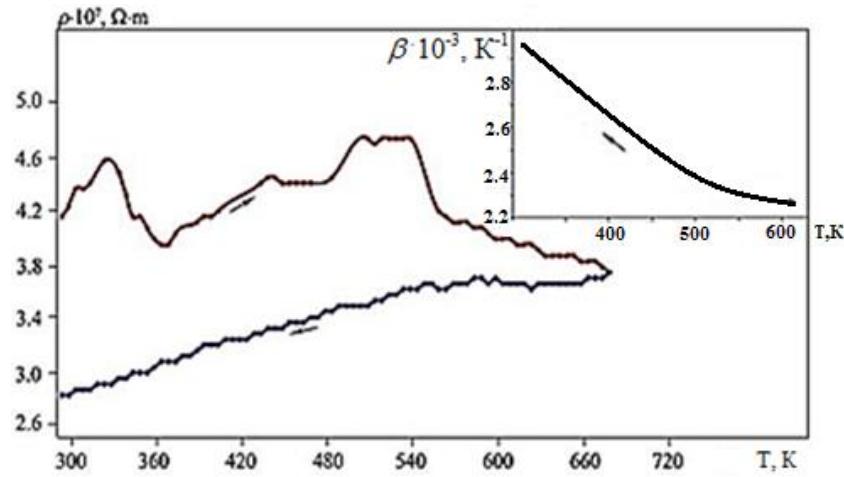


Рис.3.3. Температурні залежності питомого опору і диференціального ТКО (на вставці) для плівкових ВЕС Fe(18)/Co(12)/Al(15)/Ni(17)/Cu(17)/П (фазовий стан – після осадження ГЦК1)

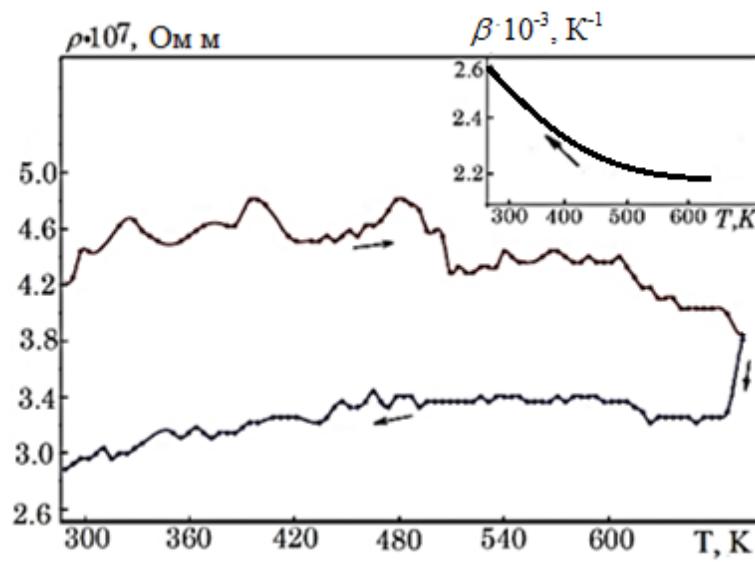


Рис.3.4. Температурні залежності питомого опору і диференціального ТКО (на вставці) для плівкових ВЕС Fe(14)/Co(17)/Al(21)/Ni(15)/Cu(7)/П (фазовий стан після осадження ГЦК1+ГЦК2)

На рис. 3.3 і 3.4 представлена типові температурні залежності питомого опору і термічного коефіцієнту опору для зразків ВЕС, які у вихідному стані відповідають фазовому складу ГЦК1 (рис. 3.3) або ГЦК1+ГЦК2 (рис. 3.4).

Зовнішній характер залежностей і їх температурний хід вказує на те, що електрофізичні властивості цих зразків повністю аналогічні. Це свідчить про те, що при відпалюванні зразків відбувається гомогенізація ВЕС і незалежно від базової фази формуються ВЕС сплави з приблизно однаковим елементним складом. Немонотонний характер залежності  $\rho(T)$  як раз і пов'язаний із процесами упорядкування сплавів і абсолютно не відображають характер взаємодії електронів провідності із фононами та дефектами кристалічної будови. Такий висновок базується на тому, що криві охолодження, мають типовий характер для металевих зразків, як і залежність  $\beta(T) \approx A(T)/T$  типова лише для металевих матеріалів.

Виходячи із температурної залежності  $\beta(T)$  можна оцінити величину коефіцієнта  $A(T)$ . У загальному вигляді співвідношення для цього коефіцієнту:

$$A(T) \approx \frac{[\beta(T_2) - \beta(T_1)]T_1 T_2}{T_1 - T_2}.$$

Якщо провести розрахунок  $A(T)$  за даними рис. 2.4 для інтервалу  $T_1 - T_2 = 350\text{K}$ , то отримаємо його величину  $(2,0 - 5,2) \cdot 10^{-1}$ . Не дивлячись на наближений характер вихідного рівняння  $\beta(T) \approx A(T)/T$ , знання  $A(T)$  дає можливість оцінювати величину ТКО при більш високих температурах, що експериментально не завжди можливо.

Фізичний зміст  $A(T)$  стає зрозумілим, якщо скористатись більш загальним співвідношенням для питомого опору і термічного коефіцієнту опору:

$$\rho(T) = B \cdot T^n + \rho_{\text{зал}}, \quad \beta(T) = \frac{d \ln \rho}{dT}.$$

У найбільш простому випадку, коли  $\rho_{\text{зал}} \ll \rho(T)$ ,  $\beta(T) = \frac{n}{T}$ , де  $n = 1$  (якщо  $\rho \propto T$ ), 2 ( $\rho \propto T^2$ ), 3 ( $\rho \propto T^3$ ), або у більш загальному випадку  $0 < n \leq 5$ , де величини  $n < 1$ , як і в нашому випадку. Дробний показник  $n$  у рівнянні для  $\rho(T)$  має місце у плівках при електрон-фононній взаємодії при температурах більших температури Дебая.

Використовуючи залежність ТКО від загальної товщини  $d$  (табл. 3.2) можна здійснити розрахунок параметрів електроперенесення використовуючи теоретичні моделі для розмірного ефекту в електрофізичних властивостях.

Розрахунки були здійснені в рамках моделі Фукса-Зондгеймера та з використанням лінеаризованого співвідношення [22, 23]. У рамках цих моделей залежність  $\beta(D)$  спрямляється в координатах  $\beta \cdot D - D$ :

$$\beta \cdot D \propto \beta_\infty \cdot D - \frac{3}{8} \lambda_\infty (1-p) \cdot \beta_\infty \quad (\text{Фукс-Зондгеймер, ФЗ}),$$

$$\beta \cdot D \propto \beta_g \cdot D - \frac{3}{8} \lambda_g (1-p) \cdot \beta_g H(\alpha) \quad (\text{Тельє-Тоссе-Пішар, ТТП}),$$

де  $\beta_\infty = \lim_{D \rightarrow \infty} \beta$ ,  $\beta_g$  – ТКО, який обумовлений розсіюванням електронів провідності на межах зерен, дефектах кристалічної будови та фононах  $\beta_g \approx \beta_\infty$ ;  $\lambda_g \approx \lambda_\infty$  – СДВП;  $p$  – коефіцієнт дзеркальності зовнішніх поверхонь плівки;  $H(\alpha)$  – відома функція [22], яка у нашому випадку  $\approx 0.3$ . Відмітимо, що розрахунок  $\beta(T)$  повністю відповідає теоретичним уявленням про розмірний ефект в ТКО [22, 23], оскільки має таку ж тенденцію до зменшення величини при збільшенні товщини, як і у випадку одношарових плівок. Як видно із наведених рівнянь, кутовий коефіцієнт залежності  $\beta \cdot D$  від  $D$  дорівнює  $\beta_\infty$  або  $\beta_g$ , а за величиною відрізка, який відсікається по осі  $y$ , можна розрахувати величину СДВП.

Таблиця 3.2 – Температурний коефіцієнт опору для плівкових ВЕС при  $T = 300$  К

Зразок (товщина, нм)	D, нм	$\beta \cdot 10^3$ , $K^{-1}$	$(\beta \cdot D) \cdot 10^2$ , $nm \cdot K^{-1}$
Fe(18)/Co(12)/Al(15)/Ni(17)/Cu(17)/П	80	3,24	25,9
Fe(22)/Co(17)/Al(12)/Ni(10)/Cu(13)/П	74	3,00	22,2
Fe(14)/Co(17)/Al(21)/Ni(15)/Cu(7)/П	74	2,57	19,0
Cr(8)/Al(5)/Co(7)/Cu(5)/Ni(7)/Fe(7)/П	39	1,80	7,2
Al(4)/Cu(3)/Co(5)/Cr(5)/Fe(5)/П	22	2,00	4,4

Були отримані наступні результати у дифузному наближенні ( $p = 0$ ). Значення величин ТКО і СДВП (табл. 3.3) ще раз підтверджують нашу думку про те, що плівкові ВЕС можна розглядати як одношарові багатокомпонентні зразки.

Таблиця 3.3 – Результати розрахунків

Модель	$\beta, K^{-1}$	$\lambda, nm$	$p$	$H(\alpha)$
ФЗ	$3,5 \cdot 10^{-3}$	73	0	–
ТТП	$3,5 \cdot 10^{-3}$	85	0	0,3

Виходячи із даних таблиці 3.3, можна прослідкувати залежність ТКО від концентрації атомів Fe або Cu (рис. 2.4). Ці результати знаходяться у повній відповідності із даними роботи [24].

Проведені дослідження на прикладі середньо- та високоентропійних плівкових сплавів [25– 32] вказують на спільні особливості і закономірності умов реалізації ізотропного (ГМО) магнітоопору, АМО, розмірних, температурних та концентраційних ефектів. Було встановлено, що при певних умовах (деяка оптимальна концентрація магнітної компоненти, термообробка зразків до 700-800 К)

у плівках ВЕС залежності питомого опору від індукції магнітного поля мають усі ознаки ГМО із амплітудою (0,1-0,3)%. ГМО переходить в АМО при термовідпалюванні до  $T > 700\text{K}$  або при перевищенні концентрації магнітних компонент. Амплітуда АМО має приблизно таку ж величину, як і у випадку ГМО (рис. 3.5) [33]. Відмітимо, що велике значення  $B_c$  у невідпалених ВЕС (рис.2.5, а-в) можна пояснити із точки зору великого розкиду розмірів гранул або їх аналогів - областей локально підвищеної концентрації магнітної компоненти, на яких, в силу різних причин, не реалізується СЗРЕ. У той же час якщо сформувати більш-менш ефективну систему гранул після термообробки, то спостерігається стабільний ефект ГМО (рис.3.6) [34]. Типові залежності величини магнітоопору від індукції  $B$  представлені на рис. 3.5.

Амплітуда МО в межах 0,15 – 0,17% у трьох геометріях вимірювання і його польова залежність говорять про реалізацію ефекту ГМО. Така ситуація можлива лише у випадку спін-залежного розсіювання електронів, і тому ми приходимо до висновку, що таке розсіювання відбувається на квазігранулах, оскільки іншого механізму запропонувати неможливо.

### **3.3 Кореляція між електрофізичними та магніторезистивними властивостями і ступенем ентропійності ВЕС**

Дослідження властивостей двокомпонентних систем у конденсованому стані дозволяють розширити можливості їх практичного застосування в сучасній техніці.

У тришаровій пліковій системі магнітні шари (М) розділяються шаром немагнітного (НМ) матеріалу. Якщо магнітні шари мають антипаралельні вектори намагнічення, то в тришаровій системі з'являються умови для виникнення СЗРЕ. Перевага таких структур полягає у відносно низьких значеннях полів насичення, при яких спостерігається ефект ГМО. У гранульованих плікових сплавах при певних умовах можуть виникати явища АМО та ГМО, оскільки у

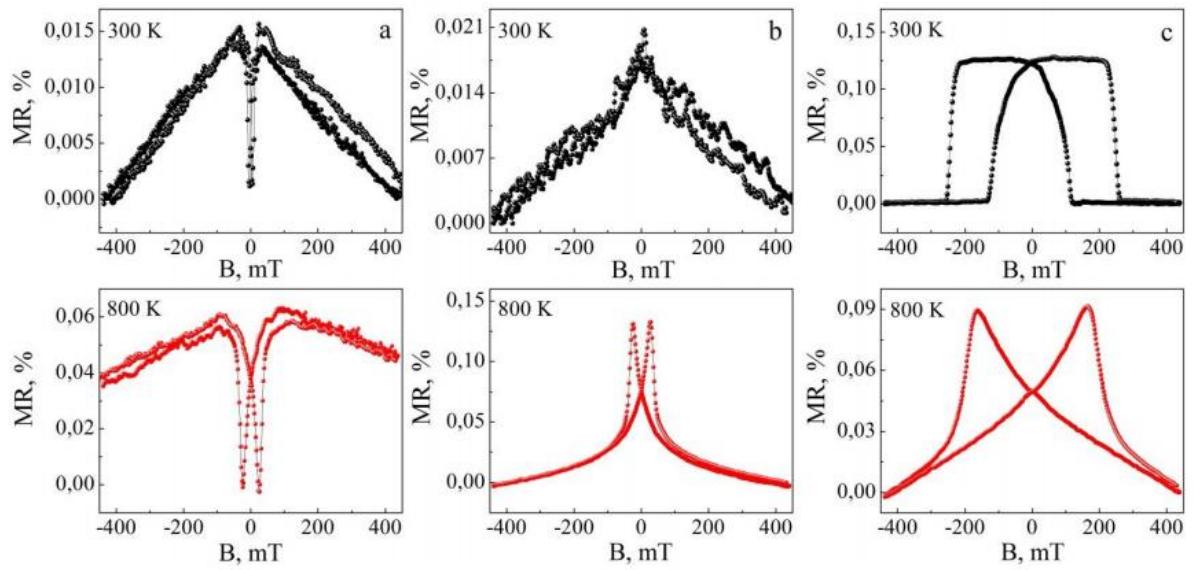


Рис.3.5. Залежність магнітоопору від індукції магнітного поля для плівкового зразка Al(4)/Cu(3,2)/Co(4,5)/Cr(5,2)/Fe(4,7)/Ni(4)/П в трьох орієнтаціях індукції відносно напрямку електричного струму

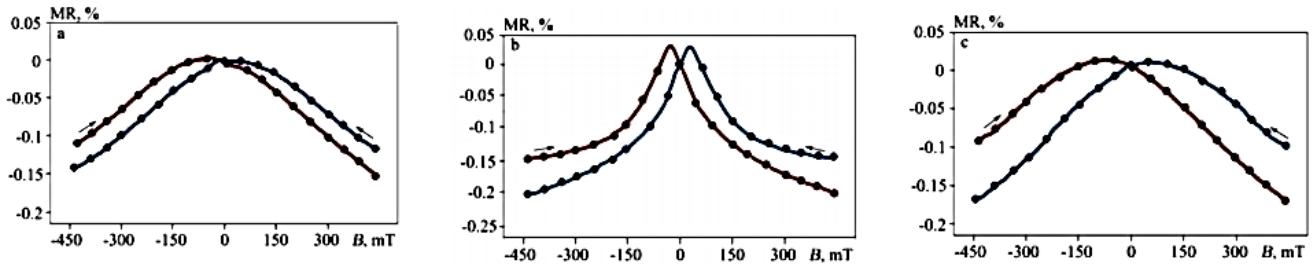


Рис.3.6. Польова залежність ГМО для плівкових ВЕС Co(20)/Ni(14)/Cu(20)/Fe(30)/Al(18)/П після відпалювання до 810 К в трьох геометрія вимірювання – поздовжній (а), перпендикулярний (б) та поперечній (в) відповідно. Стрілками показаний напрям циклів «намагнічування - розмагнічування»

немагнітній матриці надлишкові магнітні атоми утворюють нанорозмірні гранули радіусом від 1 до 10 нм, частина з яких знаходиться у феромагнітному або суперпарамагнітному стані і спричиняє СЗРЕ.

Результати, отримані нами, узагальнені у вигляді рис.3.7, який відображає кореляцію між величинами ТКО і  $\Delta S_{3M} = 3$  Дж/моль·К. Поступове зменшення ТКО при переході від низько ентропійних до високоентропійних сплавів пояснюється тим, що питомий опір у напрямі СЕС → ВЕС збільшується у результаті зменшення рухливості атомів при формуванні базової фази СЕС або ВЕС, гомогенізації т.р., але при цьому чутливість опору до температури майже не змінюється [35].

Дослідження МО на прикладі тих же плівкових систем, що і випадку дослідження електрофізичних властивостей (рис.3.7), дали наступні результати. У всіх випадках для низько-, середньо- та високоентропійних сплавів амплітуда МО при  $T=300K$  має відносно малу величину (в основному на рівні 0,2-0,4%), що є типовою ситуацією для плівкових систем, які відносяться до класу СЕС або ВЕС. Лише в окремих випадках [33] амплітуда МО досягає величини 0,8-1,0%. Абсолютно малу величину МО має у випадку ВЕС. Характеристика плівкових матеріалів і результати вимірювання МО наведені у таблиці 3.4.

Необхідно особливо підкреслити, що польова залежність МО у всіх трьох геометріях вимірювання зовні має повністю ідентичний характер (за виключенням величини амплітуди) і усі ознаки ГМО. Оскільки цей ефект реалізується при спін-залежному розсіюванні електронів на магнітних інтерфейсах або гранулах, то можна зробити висновок, що у плівкових ВЕС у вигляді одношарового т.р. реалізуються елементи гранульованого стану, що і буде спричиняти ефект гігантського магнітоопору. У той же час необхідно відмітити, що у всіх випадках архітектури плівкових матеріалів, властивості яких вивчалися нами, при певних умовах спостерігається АМО, який обумовлений ні СЗРЕ, а спін-орбітальною взаємодією електронів. Його амплітуда відносно мала, оскільки навіть у масивних зразках АМО

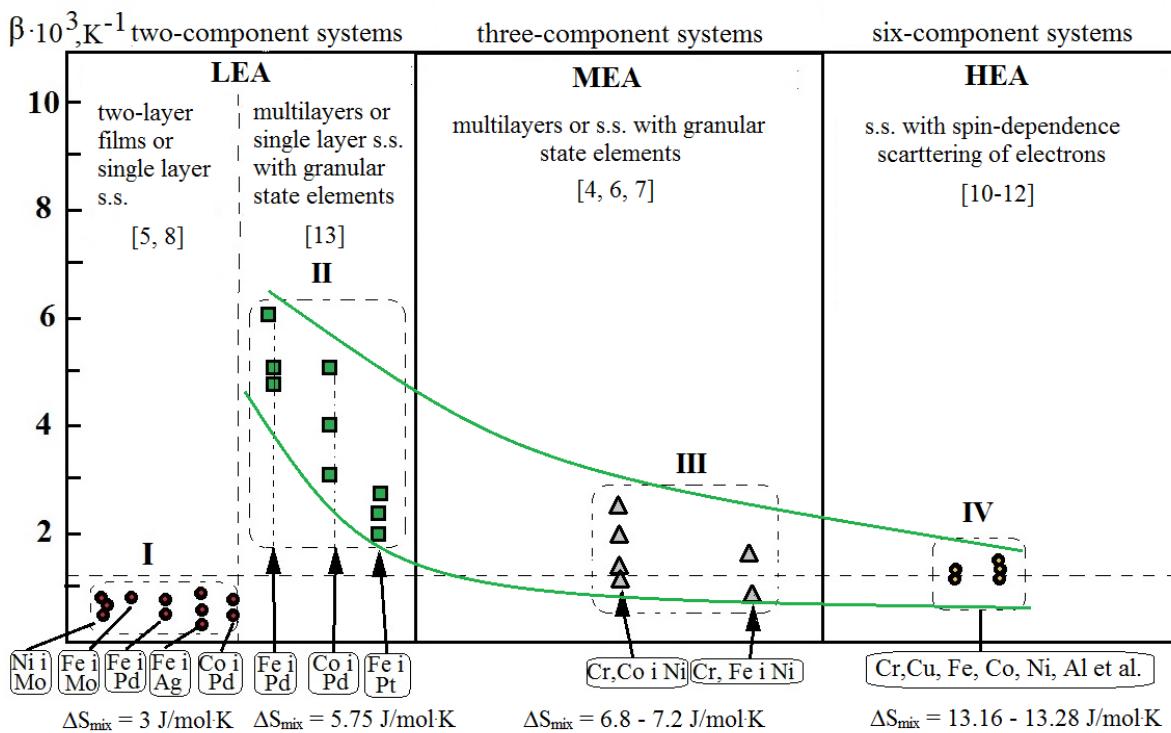


Рисунок 3.7 – Кореляція ТКО і ентропії змішування  $\Delta S_{3M}$  для плівок з різним ступенем ентропійності

Таблиця 3.4 – Загальна характеристика зразків і результати вимірювання МО при  $T = 300\text{K}$

№	Елементний склад зразків після відпалювання (концентрація, ат.%)	$T_b, \text{K}$	$R, \text{Ом при } B = 0 \text{ Тл}$	$\Delta S_{3M}, \text{Дж/моль К}$	МО, %
1	Cu(15)/Ni(23)/Fe(22)/Co(22)/Al(18)/П	750	134,0	13,18	0.30 ( $\perp$ )
2	Cu(15)/Ni(25)/Fe(20)/Co(25)/Al(15)/П	800	152,0 152,2	13,12	0.08 (+) 0.05 ( $\perp$ )
3	Co(20)/Ni(14)/Cu(20)/Fe(28)/Al(18)/П	800	33,0 25,0 25,0	13,20	0.15 (  ) 0.17 (+) 0.20 ( $\perp$ )
4	Co(20)/Ni(25)/Cu(20)/Fe(20)/Al(15)/П	800	47,0 48,0 48,4	13,23	0.15 (  ) 0.17 (+) 0.30 ( $\perp$ )

не більше 4%, що може бути в десятки разів менше величини ГМО. У цьому випадку архітектура зразків не відіграє помітної ролі.

Матеріали кваліфікаційної роботи у березні 2021 року були представлені на Всеукраїнському конкурсі наукових студентських робіт в галузі «Фізики та астрономія» (Прикарпатський національний університет імені Василя Стефаника, м.Івано-Франківськ) під керівництвом Проценя І.Ю. та оприлюднена на сайті <https://ftf.pnu.edu.ua/wp-content/uploads/sites/40/2021/03/%D0%92%D0%95%D0%A1.pdf>

## ВИСНОВКИ

1. Установлено, що в плівках ВЕС після одночасної або пошарової конденсації із наступною термообробкою стабілізується ГЦК- фаза (параметри решітки  $a = 0,360 - 0,365$  нм або при надлишковій концентрації атомів Al  $a = 0,402 - 0,405$  нм). Поряд із базовою ГЦК- фазою часто спостерігаються сліди ОЦК-фази, яка відповідає інтерметаліду  $\text{Ni}(\text{Fe})_3\text{Al}$  або т.р. – Cr в Fe.

2. При електрофізичних дослідженнях встановлено, що питомий опір на порядок більший, а ТКО відносно менший у порівнянні із відповідними величинами для масивних ВЕС, що можна пояснити невпорядкованістю плівкових сплавів.

3. У рамках моделі Тельє, Тоссе і Пішар на основі експериментальної залежності ТКО від товщини плівки ВЕС вперше розраховані наступні параметри: середня довжина вільного пробігу електронів  $\lambda = 73-85$  нм, коефіцієнт дзеркальності  $\rho \approx 0$  і функція зерномежового розсіювання  $H(\alpha) \approx 0,3$ .

4. Уперше спостерігався ізотропний магнітоопір (ГМО) із амплітудою до 0,015%, який реалізується завдяки спін-залежному розсіюванню електронів на магнітних частинках  $\text{Ni}(\text{Fe})_3\text{Al}$  і квазігранулах, що представляють собою області підвищеної концентрації атомів магнітних компонент.

5. Установлена кореляція між ступенем ентропійності плівкових сплавів із різною архітектурою та їх електрофізичними і магніторезистивними властивостями. У випадку ТКО експериментально спостерігається його монотонне зменшення при зростанні ентропії змішування: від  $(2-6)\cdot 10^{-3}$  К $^{-1}$  (низькоентропійні сплави) до  $(1-2)\cdot 10^{-3}$  К $^{-1}$  (високоентропійні сплави). У випадку МО аналогічна залежність має немонотонний характер: МО = (0,30-0,35)% (низькоентропійні сплави), максимум МО = (0,60-0,95)% (середньоентропійні сплави) і зменшення МО до (0,15-0,30)% (високоентропійні сплави).

## СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Yeh J.W., Chen S.K., Lin S.J., Gan J.Y., Chin T.S., Shun T.T. Nanostructured high-entropy alloys with multi-principal elements—novel alloy design concepts and outcomes // Advanced Engineering Materials. – 2004. – V.6 (5). – P. 299 – 303.
2. Погребняк А.Д., Багдасарян А.А., Якущенко И.В., Береснев В.М. Структура и свойства высокоэнтропийных сплавов и нитридных покрытий на их основе // Успехи химии. – 2014. – V.83, №11. – P. 1027 – 1061.
3. Древаль Л.А., Агравал П.Г., Турчанин М.А. Высокоэнтропийные сплавы как материалы // Вісник Донбаської державної машинобудівної академії. – 2014. – №1(32). – С.58 – 64.
4. Фирстов С.А., Горбань В.Ф., Андреев А.О. и др. Сверхтвердые покрытия из высокоэнтропийных сплавов // Наука та інновації. – 2013. – Т.9, №5. – С.32 – 39.
5. Карпець М.В., Макаренко О.С., Мисливченко О.М. та ін. Вплив Ni на фазовий склад високоентропійних сплавів // Наукові вісті НТУУ «КПІ». – 2014. – №2. – С.46 – 52.
6. Sobol O.V. Pogrebnyak A.D., Yakushchenko I.V. et al. Microstructure, physical and chemical properties of nanostructured coatings // Mater. Chem. Phys. – 2014. – V.147(3). – P.1079 – 1091.
7. Gludovatz B., Hohenwarter A., Catoor D. et. al. A fracture-resistant high-entropy alloy for cryogenic applications // Metal Alloys. – 2014. – V.345. – Iss.6201. – P.1153 – 1158.
8. Senkov O.N., Miller J.D., Miracle D.B. et. al. Accelerated exploration of multi-principal element alloys // Nature Comm.– 2015. – DOI:10.1038/ncomms7529.
9. Yong Zhang, Ting Ting Zuo, Zhi Tang, Michael C. Gao, Karin A. Dahmen, Peter K. Liaw, Zhao Ping Lu. Microstructures and properties of high-entropy alloys // Progress in Materials Science. – 2014. – V.61. – P.1–93.
10. Tsai M. H. Physical properties of high entropy alloys // Entropy. – 2013 . . – P.5338-5345.

11. Bagdasaryan A.A., Pshyk A.V., Coy L.E., Konarski P., Misnik M., Ivashchenko V.I., Kempinski M., Mediukh N.R., Pogrebnjak A.D., Beresnev V.M., Jurga S. A new type of (TiZrNbTaHf)N/MoN nanocomposite coating: Microstructure and properties depending on energy of incident ions // Composites Part B. – 2018. – V.46. – P.132–144.
12. An-Chen Fan, Jian-Hong Li, Ming-Hung Tsai. On the phase constituents of three CoCrFeNiX (X=V, Nb, Ta) high-entropy alloys after prolonged annealing // Journal of Alloys and Compound. – 2020. – V.823. – P.153524.
13. Sheng-Yun Su, Yi-Ting Fan, Yan-Jie Su, Chun-Wei Huang, Ming-Hung Tsai. Lattice distortion and atomic ordering of the sigma precipitates in CoCrFeNiMo high-entropy alloy // Journal of Alloys and Compound. – 2021. - V.851. – P.156909.
14. Ye Y.F., Wang Q., Lu J., Liu C.T., Yang Y. High-entropy alloys: challenges and prospects // Materials Today. – 2016. – V.19, №6. – P.349 – 362.
15. George E.P., Raabe D., Ritchie R.O. High-entropy alloys (review) // Nat. Rev. Mat. – 2019. – V.4. – P.515.
16. Косенко О.С., Калініченко А.Ю., Шкурдода Ю.О., Шабельник Ю.М. Характерні особливості високоентропійних сплавів / Міжнародна конференція студентів і молодих вчених «Фізика, електроніка, електротехніка. ФЕЕ-2021». – 2021. – С.49-50.
17. Прилади і методи дослідження пілкових матеріалів: навч. посіб. / І.Ю. Проценко, А.М. Чорноус, С.І. Проценко. – СумДУ, 2007. – 264 с.
18. Власенко О.В., Ткач О.П., Шумакова Н.І., Однодворець Л.В. Магніторезистивні та магнітооптичні властивості двокомпонентних пілкових сплавів на основі заліза // Ж. нано- електрон. фіз. – 2018. – Т.10, №4. – С.04016-1 – 04016-4.
19. Buryk I.P., Hrychanovs'ka T.M., Poduremne D.V., Stepanenko A.O. Structure and electrophysical properties of double-component film alloys based on molybdenum and iron or nickel // J. Nano- Electron. Phys. – 2018. – V.10, №5. – P.05026-1 – 05026-4.
20. Салтиков Д.І., Шкурдода Ю.О., Проценко І.Ю. Структурно-фазовий стан та електропровідність пілкових структур на основі ОЦК фази сплаву Fe-Co та Cu //

Журнал нано- та електронної фізики. – Т.10, №3. 2018. – С.04031-1 - 04031-6.

21. Салтиков Д.І., Шкурдода Ю.О., Проценко І.Ю. Вплив умов термообробки на магніторезистивні властивості тришарових структур  $Fe_{0,2}Co_{0,8}/Cu/Fe_{0,2}Co_{0,8}$  – Журнал нано- та електронної фізики. – 2018.– Т.10, №4. 2018. – С.04031-1 - 04031-5.
22. Проценко І.Ю., Саєнко В.А. Тонкі металеві плівки (технологія та властивості): навч. посібник. – Суми: Сумський державний університет, 2002. – 187 с.
23. Фізичні властивості плівкових матеріалів мікро- і наноелектроніки: навчальний посібник у 2-х ч. / І.М. Пазуха, І.Ю. Проценко, І.В.Чешко: за заг. ред. проф. І.Ю. Проценка. – Суми: Сумський державний університет, 2014. – Ч.1. – 230 с.
24. Yih-Farn Kao, Swe-Kai Chen, Ting-Jie Chen, Po-Chou Chu, Jien-Wei Yeh, Su-Jien Lin Electrical, magnetic, and Hall properties of  $Al_xCoCrFeNi$  high-entropy alloys // Journal Alloys and Compound. – 2011. – V.509, №5. – P.1607 – 1614.
25. Bereznyak Yu., Odnodvorets L.V., Poduremne D., Protsenko I.Yu., Shabelnyk Yu.M. High-entropy film alloys: electrophysical and mangetoresistive properties / Springer Proceedings in Physics. Nano optics, nanophotonics, nanostructures, and their applications. Editors O. Fesenko, L. Yatsenko: Springer International Publishing , 2018. – P. 17 – 24.
26. Bereznyak Yu.S., Odnodvorets L.V., N.I. Shumakova, I.Yu. Protsenko, Z.M. Protsenko, C.J. Panchal, Priya. S. Suryavanshi, P.K. Mehta Thermal coefficient of Resistance of High-entropy Film Alloys // IEEE 8th International Conference on “Nanomaterials: Applications & Properties”. – Sumy State University. – P. 01SPN87-1 - 01SPN87-4.
27. Bereznyak Yu., Opielak M., Poduremne D., Protsenko I., Shabelnyk Yu. Crystalline structure and physical properties of multicomponent (high-entropy) film alloys - XII-th International Conference on Ion Implantation and Other Applications of ions and Electrons, Poland, Kazimierz Dolny, 2018. – P.111.
28. Shumakova N.I., Stepanenko A.O., Rylova A.K., Tkach O.P. Magnetoresistive properties of double-component film materials based on Fe or Co and Ag / Modern problems of Condensed Matter V-th international Conference. – Kyiv National

University. – 2018. – P. 67 – 68.

29. Bereznyak Yu. S., Poduremne D.V., Shabelnyk Yu.M., Protsenko I.Yu. High-entropy alloys: thermal coefficient of resistance and magnetoresistance / Modern problems of Condensed Matter V-th international conference, Kyiv National University. – 2018. – P.43.
30. Vorobiov S.I., Protsenko S.I., Panchal C.J., Odnodvorets L.V., Poduremne D.V., Protsenko I.Yu. Magnetoresistance and magnetic properties high-entropy film alloys with FCC lattice / International Research and Practice Conference: Nanotechnology and Nanomaterials, NANO-2018. – Kyiv National University, 2018. – P. 494.
31. Bereznyak Yu.S., Odnodvorets L.V., Poduremne D.V., Protsenko I.Yu., Rylova A.K., Shumakova N.I. The phase composition of film materials with different degrees of entropy // IEEE 9th International Conference on «Nanomaterials: Applications & Properties». – Sumy State University. – 2019. – P. 01TFC49-1 - 01TFC49-5.
32. Bereznyak Yu.S., Opielak M., Odnodvorets L.V., Poduremne D.V., Protsenko I.Yu., Shabelnyk Yu.M. Crystalline structure and physical properties of high-entropy film alloys // J.Nano- Electron. Phys. – 2019. – V.11, №2. – P. 02026-1–02026-6.
33. Однодворець Л.В., Проценко І.Ю. Магніторезистивні властивості плівкових матеріалів електроніки з різною архітектурою / Modern Engineering Research: Topical problems, challenges and modernity (collective monograph). – 2020. – Prague: Czech Technical University. – P. 317 – 336.
34. Шабельник Ю.М., Рилова А.К., Шумакова Н.І., Проценко І.Ю. Особливості магніторезистивних властивостей багатокомпонентних (високоентропійних) плівкових матеріалів / Матеріали XXIV Міжнародного молодіжного форуму «Радіоелектроніка та молодь в ХХІ столітті». – 2020. – Т.1. – С.69-70.
35. Protsenko I.Yu., Odnodvorets L.V., Shumakova M.O., Rylova A.K. Correlation between the value granules spin in film alloys based on Fe and Ag and the magnetic and thermal coefficients of magnetic resistance / IEEE International Conference on «Nanomaterials: Applications & Properties» (NAP-2020). Sumy. – P.№3470.