

УДК 539.2, 669.017.01, 539.216.2; 538.9;  
621.799.14; 537.622, 669.017.01

УКПП

№ держреєстрації 0120U102005

Інв. №

Міністерство освіти і науки України  
Сумський державний університет (СумДУ)  
40007, м.Суми, вул. Р.-Корсакова,2  
e-mail: kanc@sumdu.edu.ua

ЗАТВЕРДЖУЮ

Проректор з наукової роботи,  
доктор фіз.-мат. наук, проф.  
\_\_\_\_\_ А.М. Черноус

ЗВІТ  
ПРО НАУКОВО-ДОСЛІДНУ РОБОТУ

Взаємозв'язок між магніторезистивними і магнітними властивостями та  
електронною структурою багатокомпонентних плівкових сплавів

**ДОСЛІДЖЕННЯ МАГНІТОРЕЗИСТИВНИХ І МАГНІТНИХ  
ВЛАСТИВОСТЕЙ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ СПЛАВІВ**

(проміжний)

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

С.О. Непійко

2021

Рукопис закінчено 21 грудня 2021 року

Результати роботи розглянуті науковою радою, протокол від 23 грудня 2021 р. №7

## СПИСОК ВИКОНАВЦІВ

Керівник НДР, виконавець за цивільно- правовими договорами № 52.20.01-20/22.3Ф-01/П1 та № 52.20.01-20/22.3Ф-01/П13 д-р. фіз.-мат. наук, професор	<hr/> 21.12.2021 р.	С.О. Непійко (вступ, п. 1.1, 3.2)
Головний науковий співробітник, д-р. фіз.-мат. наук, професор	<hr/> 21.12.2021 р.	І.Ю. Проценко (п. 1.1, 3.1, висновки)
Головний науковий співробітник, д-р. фіз.-мат. наук, професор	<hr/> 21.12.2021 р.	Ю.О. Шкурдода (п. 2.1, 2.2, 3.2, 3.3)
Старший науковий співробітник, канд. фіз.-мат. наук, доцент	<hr/> 21.12.2021 р.	Н.І. Шумакова (п. 2.3, 2.4, перелік джерел посилання)
Старший науковий співробітник, доктор філософії	<hr/> 21.12.2021 р.	М.О. Шумакова (п. 1.2, 1.4)
Старший науковий співробітник, канд. фіз.-мат. наук, доцент	<hr/> 21.12.2021 р.	Ю.М. Шабельник (п. 1.2, 3.3)
Старший науковий співробітник, д-р. фіз.-мат. наук, доцент	<hr/> 21.12.2021 р.	І.О. Шпетний (п. 1.1, 3.2)
Молодший науковий співробітник	<hr/> 21.12.2021 р.	А.М. Логвинов (п. 1.2, 2.2)
Провідний інженер	<hr/> 21.12.2021 р.	О.С. Лободюк (п. 1.1, 1.2)
Молодший науковий співробітник	<hr/> 21.12.2021 р.	С.І. Воробйов (п. 3.3)

Виконавець за цивільно-  
правовим договором  
№ 52.20.01-20/22.3Ф-01/ПЗ та  
№ 52.20.01-20/22.3Ф-01/П11,  
аспірант

---

21.12.2021 р.

О.В. Бездідько  
(п. 1.1)

Виконавець за цивільно-  
правовим договором 52.20.01-  
20/22.3Ф-01/П2 та 52.20.01-  
20/22.3Ф-01/П12 канд. фіз.-  
мат. наук

---

21.12.2021 р.

О.В. Пилипенко  
(п. 3.1, 3.2)

Виконавець за цивільно-  
правовим договором  
№ 52.20.01-20/22.3Ф-01/П7,  
канд. фіз.-мат. наук, доцент

---

21.12.2021 р.

І.М. Пазуха  
(п. 3.1, 3.2)

Виконавець за цивільно-  
правовим договором  
№ 52.20.01-20/22.3Ф-01/П10,  
аспірант

---

21.12.2021 р.

Р.М. Петренко  
(п. 2.3)

## РЕФЕРАТ

Звіт про НДР: 66 с., 30 рис., 71 джерело.

БАГАТОКОМПОНЕНТНИЙ ПЛІВКОВИЙ СПЛАВ, МАГНІТООПІР, СПІН-ЗАЛЕЖНЕ РОЗСПЮВАННЯ ЕЛЕКТРОНІВ ПРОВІДНОСТІ, НАМАГНІЧЕНІСТЬ НАСИЧЕННЯ, КОЕРЦИТИВНА СИЛА.

Об'єкти досліджень – процеси фазових переходів, взаємозв'язок між магніторезистивними і магнітними властивостями плівкових високоентропійних сплавів (ВЕС) та їх електронною структурою.

Мета проекту полягає у встановленні взаємозв'язку між структурно-фазовим складом, магніторезистивними і магнітними властивостями високоентропійних плівкових сплавів на основі Cu, Al, Cr, Fe, Ni та Co.

Методи дослідження – формування багатокомпонентних плівкових сплавів методом одночасного магнетронного розпилення з мішенню із шістьма сегментами; метод магнітометрії та резистометрії в умовах надвисокого безмасляного вакууму.

Показано, що для високоентропійних плівкових сплавів на основі Al, Cr, Fe, Co, Ni та Cu, зокрема плівок еквіатомного складу, фіксується лише анізотропний характер магнітоопіру. При цьому концентраційні залежності магнітоопору мають монотонний характер, при збільшенні вмісту немагнітних металів величина магнітоопору зменшується. Розмірні залежності анізотропного магнітоопору також мають монотонний характер. При збільшенні товщини плівкових сплавів спостерігається незначне зростання величини магнітоопору.

Встановлено закономірності в розмірних та концентраційних залежностях магнітних параметрів (коерцитивна сила, залишкове намагнічення та намагнічення насичення) для багатокомпонентних плівкових сплавів AlCrFeCoNiCu із різною товщиною та концентрацією компонент. Показано, що усі параметри визначаються, в першу чергу, концентрацією компонент та температурою при якій проводилися магнітні вимірювання.

## ЗМІСТ

Список умовних позначень.....	5
ВСТУП.....	6
1 СТРУКТУРНО-ФАЗОВИЙ СТАН ТА МАГНІТНІ ВЛАСТИВОСТІ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ СПЛАВІВ.....	7
1.1 Структура і фізичні властивості високоентропійних масивних сплавів....	8
1.2 Магнітні фази високоентропійних сплавів $FeCoNiAl_xMn_x$ .....	11
2 МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ .....	21
2.1 Одержання зразків багатокомпонентних плівкових сплавів.....	21
2.2 Методика дослідження магнітоопору зразків .....	26
2.3 Методика дослідження магнітних властивостей плівок.....	27
3 МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ТА МАГНІТНІ ВЛАСТИВОСТІ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ.....	30
3.1 Магніторезистивний ефект у багатокомпонентних плівкових сплавах ...	30
3.1.1 Магнітоопір двокомпонентних плівкових сплавів.....	30
3.1.2 Магнітоопір трикомпонентних плівкових сплавів.....	35
3.1.3 Концентраційні та польові залежності магнітоопору плівкових сплавів на основі $Pu$ і $Cu$ .....	39
3.2. Магнітні параметри багатокомпонентних плівкових сплавів.....	46
3.2.1 Магнітні параметри трикомпонентних плівкових сплавів $Fe-Co-Cu$ .....	46
3.2.2 Магнітні властивості плівкових сплавів на основі $Pu$ і $Cu$ .....	47
3.2.3 Магнітоопір та магнітні параметри плівкових сплавів $FeNiCoCu$ ...	50
3.3 Магніторезистивні та магнітні властивості високоентропійних плівкових сплавів $AlCrFeCoNi$ .....	52
ВИСНОВКИ.....	57
СПИСОК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАННЯ .....	59

## СПИСОК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ

- $a, a_0$  – параметр кристалічної решітки плівки і масивних зразків;
- $d, d_F, d_N$  – товщина плівки, товщина магнітного шару, товщина немагнітного шару;
- ГЦК – гранецентрована кубічна кристалічна решітка;
- ГЦП – гексагональна щільно пакована кристалічна решітка;
- ОЦК – об'ємноцентрована кубічна кристалічна решітка;
- $hkl$  – індекси Міллера;
- $L$  – середній розмір кристалітів;
- $T$  – температура, К;
- $T_{\text{відп}}$  – температура відпалювання, К;
- П – підкладка;
- ПЕМ – просвічуючий електронний мікроскоп;
- РЕМ – растровий електронний мікроскоп;
- АСМ – атомно-силовий мікроскоп;
- Ру – феромагнітний сплав пермалою
- $d_{hkl}$  – міжплощинна відстань
- МО – магнітоопір;
- ГМО – гігантський магнітоопір;
- СЗРЕ – спін-залежне розсіювання електронів;
- $V_c$  – коерцитивна сила;
- $M_r$  – залишкова намагніченість;
- $M_s$  – намагніченість насичення.

## ВСТУП

**Актуальність теми.** Упродовж останніх років розроблений новий клас матеріалів, високоентропійні сплави (ВЕС), які привертають значну увагу через утворення недосліджених фаз, стабілізованих внаслідок високої ентропії змішування [1-5]. Деякі з цих фаз мають унікальні механічні [2-4] або магнітні [5-7] властивості. Висока ентропія змішування різних металевих елементів із концентрацією, близькою до еквімолярної, може значно зменшити вільну енергію Гіббса і стабілізувати тверді розчини з відносно простою кристалічною структурою і гарною комбінацією властивостей. На основі цієї концепції й розробляється новий клас конструкційних і функціональних матеріалів [6, 7].

Головна особливість високоентропійних сплавів полягає в тому, що в них немає основного (базового) елемента. Усі елементи композиції, взяті в рівних молярних частках. У них різко зростає ентропія, але при цьому такі системи залишаються стабільними. Перед науковим світом відкриваються перспективи створення сплавів з унікальною комбінацією властивостей і високими експлуатаційними характеристиками. З них можуть бути виготовлені як об'ємні матеріали, так і покриття, плівки для різних галузей промисловості.

Незважаючи на велику кількість експериментальних результатів дослідження фізичних властивостей ВЕС ряд питань залишається до кінця не з'ясованим. Особливо це стосується магнітних та магніторезистивних властивостей нанорозмірних високоентропійних сплавів. Так, за основу були обрані недорогі метали Fe, Co та Ni для з'єднання з Al та Mn. Вибір Al і Mn не випадковий, оскільки відомо, що хоча вони і немагнітні як окремі елементи, але у поєднанні один з одним утворюють сильні феромагнітні сполуки [8].

Виходячи з вищесказаного, дослідження та ідентифікація різних магнітних фаз і встановленні зв'язку між їх магнітними властивостями та наноструктурою і фазовим складом ВЕС є актуальною науковою проблемою.

## 1. СТРУКТУРНО-ФАЗОВИЙ СТАН ТА МАГНІТНІ ВЛАСТИВОСТІ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ СПЛАВІВ (ЛІТЕРАТУРНИЙ ОГЛЯД)

Утворення простих твердих розчинів з підвищеною ентропією і великою кількістю хімічних елементів еквіатомного складу значно впливає на властивості сплаву і зумовлює комбінацію високої міцності, пластичності, термостабільності і стійкості до корозії як при кімнатних, так і при високих температурах [16, 17, 23, 24]. Формування простої структури твердих розчинів полегшує виконання структурних досліджень і сприяє усуненню крихкості, яка властива для впорядкованих з'єднань. Високоентропійні сплави можуть бути отримані тими ж методами, що і традиційні сплави. Для їх отримання застосовують ливарні технології, загартування розплаву, механічне легування (МЛ), осадження плівок і покриттів [16, 30].

Кожний метод має свої переваги й недоліки. Механічне легування забезпечує формування стабільної мікроструктури з однорідним хімічним складом, порівняно з іншими способами отримання цих сплавів. Збільшення однорідності твердих розчинів в умовах обробки при кімнатній температурі є основною перевагою МЛ над литтям, особливо багатоконпонентних сплавів з великими відмінностями в температурах плавлення вихідних компонентів. Крім того, механічне легування забезпечує формування нанокристалічної структури, що сприяє поліпшенню механічних властивостей цих сплавів.

У цьому розділі наведені результати ідентифікації різних магнітних фаз та встановленні зв'язку між їх магнітними властивостями та наноструктурою і фазовим складом. Розглянуто це питання на прикладі високоентропійних сплавів на основі Fe, Co, Ni, Mn та Al.



## 1.1 Структура і фізичні властивості високоентропійних масивних сплавів

На думку автора роботи [16], у випадку багатокомпонентних високоентропійних сплавів, які складаються з 5 і більше елементів конфігураційна ентропія змішування домінує над іншими складовими (коливальною, магнітною і електронною). Таким чином, збільшення кількості елементів повинно знижувати вільну енергію через зростання вкладу ентропії змішування.

Відповідно до гіпотези Больцмана про зв'язок між ентропією і складністю системи [29], зміна ентропії на моль  $\Delta S_{зміш}$  при формуванні твердого розчину з  $n$  елементів з однаковою молярною концентрацією може бути розрахована з наступного рівняння:

$$\Delta S_{зміш} = -k \ln w \quad (1.1)$$

де  $k$  – стала Больцмана;  $w$  - число можливих мікростанів, у яких кількість можливих принципово різних розподілів дорівнює:

$$w = N! / N_A! * N_B! \quad (1.2)$$

Отже, у випадку рівних молярних часток кожного елемента ентропія змішування приймає наступний вигляд:

$$\Delta S_{зміш} = -R(1/n \ln 1/n + 1/n \ln 1/n + \dots + 1/n \ln 1/n) = -R \ln 1/n = R \ln n \quad (1.3)$$

де  $n$  – кількість молів;  $R$  – газова стала [16]. На рисунку 1.1 показаний приклад, який ілюструє утворення п'ятикомпонентного еквіатомного сплаву.



Рисунок 1.1 – Схематичне зображення розташування п'яти компонент у еквіатомному співвідношенні перед змішуванням (а) та після змішування з утворенням простого твердого розчину (б) [27]

Із наведеного вище рівняння,  $\Delta S_{зміш}$  для випадку еквіатомних сплавів із 3, 5, 6, 9, і 13 елементами буде дорівнювати  $1,10R$ ,  $1,61R$ ,  $1,79R$ ,  $2,20R$  і  $2,57R$ , відповідно. За правилом Річардса [28] зміна ентропії в точці плавлення дорівнює  $R$ . Таким чином, ентропія сплаву вже з трьома елементами більша, ніж при плавленні металу. Однак є експериментальні підтвердження того, що у ВЕСах можуть формуватися не тільки неупорядковані тверді розчини, а й упорядковані і/або інтерметалідні фази [17, 18]. Це може означати, що висока ентропія змішування між елементами не є єдиною і достатньою умовою для утворення у ВЕСах мікроструктури на основі неупорядкованого твердого розчину заміщення.

Таким чином, на основі аналізу літературних даних можна стверджувати, що в даний час не існує універсального параметра і/або їх поєднання, які могли б точно прогнозувати утворення тієї чи іншої структури в багатокомпонентних системах сплавів.

Уже перші дослідження виявили суттєві відмінності в структурі різних високоентропійних сплавів. Були виявлені високоентропійні сплави на основі твердого розчину [29-31], суміші інтерметалідних фаз [32, 33], аморфної фази [34, 35], а також сплави з більш складною багатофазною структурою [16, 19, 26, 36].

Структура простих високоентропійних сплавів складається з твердих розчинів з хаотичним розташуванням атомів елементів. Можна допустити, що спотворення решітки різносортовними атомами є однією з причин стабільності структур твердих розчинів при високих температурах порівняно з інтерметалідами. Наприклад, сплави систем  $\text{CoCrFeNi}$  і  $\text{CoCrFeNiMn}$  мають неупорядкований твердий розчин на основі ГЦК решітки [29, 30]. Сплави проявляють високу пластичність при кімнатній температурі ( $\approx 40\%$ ), але мають низьку межу плинності ( $\approx 200$  МПа). У роботі [37] досліджувалися корозійностійкі властивості високоентропійних сплавів  $\text{CoCrFeNi}$  і  $\text{CoCrFeNiCu}$ . Як виявилось, сплав системи  $\text{CoCrFeNi}$  має високі корозійностійкі властивості порівняно зі сталлю 304L. Додавання  $\text{Cu}$  до складу сплаву приводить до її сегрегації, утворюючи міждендритні прошарки через низьку сумісність  $\text{Cu}$  з

іншими компонентами сплаву. Не менш цікавими високоентропійними сплавами є сплави VNbMoTaW [20], NbMoTaW [20], TaNbHfZrTi [37], і NbTiVZr [37], що включають у себе тугоплавкі елементи, при цьому мають однофазну структуру твердого розчину з ОЦК кристалічною решіткою. Сплави системи VNbMoTaW і NbMoTaW на відміну від CoCrFeNiMn мають хороші 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. Автори пояснюють високі механічні властивості здатністю ентропії змішання до блокування дифузії між елементами. Ще більш високі міцність і пластичні властивості при стисненні демонструє сплав системи TaNbHfZrTi ( $\sigma_{0.2} = 929$  МПа і  $\epsilon > 50\%$ ) при кімнатній температурі порівняно з системами VNbMoTaW і NbMoTaW, у яких пластичність не перевищує 1,5%.

Таким чином, ВЕСи, що мають структуру простого твердого розчину, можуть мати ряд цікавих властивостей, таких як висока міцність, жаростійкість, пластичність і корозійна стійкість, невеликі значення густини у поєднанні з високою твердістю, що робить їх привабливими для дослідження.

До інших, не менш цікавих, багатоконпонентних сплавів відносяться сплави на основі інтерметалідних фаз. До інтерметалідних високоентропійних сплавів відноситься, наприклад, сплав системи CoCrFeNiTi<sub>0.5</sub> [32].

На відміну від твердих розчинів і інтерметалідних з'єднань, аморфний сплав має неупорядковану і некристалічну атомну структуру. З високоентропійних сплавів, які мають аморфну структуру, можна виділити систему AlCrMoTaTiZr [38].

Таким чином, виходячи з літературних даних, високоентропійні сплави на основі інтерметалідних фаз, а також із аморфною структурою мають високу міцність, твердість, зносостійкість, але низьку пластичність.

Більш складна структура у ВЕСах зустрічається у сплавів, що мають 4 і більше фаз. Одним із найбільш вивчених сплавів з такою структурою є сплав системи CoCrFeNiAl<sub>x</sub>Cu [17, 38-42] Автори роботи [36] провели дослідження

структури і механічних властивостей сплаву залежно від вмісту Al. Показано, що збільшення вмісту алюмінію веде до переходу від ГЦК структури спочатку до двофазної ГЦК і ОЦК, а потім до однофазної ОЦК структури. Такий перехід, тобто поява і збільшення об'ємної частки ОЦК фази з підвищенням концентрації Al призводить до зростання міцності і зниження пластичних властивостей. До того ж цей сплав стійкий до корозії, що підтверджується результатами роботи [41].

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

## **1.2. Магнітні фази високоентропійних сплавів $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$**

Для високоентропійних сплавів важливим є питання ідентифікації різних магнітних фаз та встановленні зв'язку між їх магнітними властивостями та наноструктурою і фазовим складом. Розглянемо це питання на прикладі високоентропійних сплавів на основі Fe, Co, Ni, Mn та Al. Відмітимо, що Al та Mn вибрані не випадково, оскільки відомо, що хоча вони і немагнітні як окремі елементи, але у поєднанні один з одним утворюють сильні феромагнітні сполуки [8]. Параметричне моделювання, представлене в [5], показує, що в певному діапазоні концентрацій Al і Mn  $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$  виявляє тенденцію до формування двокомпонентних фаз.

При високій концентрації атомів Mn і Al очікується формування об'ємно-центрованого кубічного упорядкованого сплаву, тоді як при низьких концентраціях Al і Mn – переважно прогнозується гранецентрована кубічна фаза. При проміжних значеннях концентрації Al і Mn утвориться суміш цих фаз, яка буде стабільною. Подібні фазові переходи щодо тієї ж системи констатували і в інших роботах [9]. Результати досліджень, наведених в роботі [5], також на прикладі системи  $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$ , в області проміжних і низьких

концентрацій атомів Al і Mn. Розширюючи цей діапазон, зразки різних концентрацій: високої, низької та середньої, були досліджені за допомогою методу магнітно-силової мікроскопії (MFM) та енергодисперсійного рентгенівського аналізу (EDX) на скануючому електронному мікроскопі (SEM). Мета дослідження полягала у ідентифікації різних магнітних фаз та встановленні зв'язку між їх магнітними властивостями та наноструктурою і фазовим складом.

Сплави  $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$  ( $0,05 \leq x \leq 3,08$ ) отримували методом лазерного осадження металів [5]. Бажаний елементний склад був досягнутий шляхом контролю маси елементарних порошків. Елементний склад у зразках контролювали за допомогою приладу TM3000 TableTop SEM. Дослідження структури проводили на скануючому зондовому мікроскопі JPK NanoWizard 4.0 в режимі змінного струму на резонансній частоті 74 кГц з використанням магнітних зондів PPP-MFMR-10 (Nanosensors, Швейцарія). Під час дослідження зразки поміщали у зовнішнє магнітне поле з індукцією 0,58 Тл. Для розрізнення Ван-дер-Ваальсових і магнітних сил була використана двоетапна техніка вимірювань [10-12]. На першому етапі досліджували топографію зразка. У другому скануванні вимірювання топографії повторювали з наконечником на більшій висоті. На висотах понад 20 нм сили Ван-дер-Ваальса слабкі, і можна виміряти домінуючу магнітну силу, яка проявляється у зсуві фази коливань зонда, що пропорційна градієнту сили, яка діє на вістря [10, 13, 14].

Досліджені зразки мали такий склад: S1 –  $\text{FeNiCoAl}_{0,9}\text{Mn}_{0,9}$ , S2 –  $\text{FeNiCoAl}_{0,29}\text{Mn}_{0,29}$  та S3 –  $\text{FeNiCoAl}_{0,08}\text{Mn}_{0,08}$ . Зразок S1 номінально є найближчим до ВЕС з майже еквіатомним відсотком складових елементів. За допомогою MFM було виявлено, що зразки S1 і S3 є однофазними магнітними сполуками. Результати для S3, представлені в цій роботі, також є репрезентативними для S1. Навпаки, для зразка S2 було виявлено співіснування двох різних магнітних фаз.

На рис. 1.2 утворення магнітної структури з можливістю запису проілюстровано на картах фазового зсуву для зразка S1. Це псевдо-3D-

презентація, що складається з окремих площинних зображень поверхні  $30 \times 30$  мкм<sup>2</sup>, записаних на різних висотах, які показані на рисунку. На нульовій висоті видно лише об'єкти топографії (найнижче зображення). Зі збільшенням висоти Ван-дер-Ваальсівська взаємодія стає слабкою, а магнітна взаємодія стає домінуючою. Це дає можливість виявити особливості магнетизму в зразку [12]. Магнітні області на рис. 1 чітко видно на висотах від 50 до 300 нм.

Магнітні області, які фіксувалися в зразку S1 досить великі (близько 30-100 мкм). Також спостерігались і менші субобласті близько  $\sim 2$  мкм. Подібні розміри магнітних зерен (30-100 мкм) з невеликими змінами магнітних властивостей також були виявлені у зразку S3. Однак для зразка S2 фіксувалася інша морфологія. На рис. 1.3а показана типова карта зсуву фаз для зразка S2, записана на висоті 200 нм. Магнітні зерна в цьому зразку менші, ніж у S1 і S3, вони неправильної форми і існує велика різниця в магнітному контрасті між двома типами спостережуваних зерен. Зерна одного типу виглядають темніше, ніж інші, і часто вони складаються з смугастих магнітних доменів. Збільшена доменна структура вибраного зерна зображена на рис. 1.3б. На рис. 1.3в показано рельєф поверхні, що відповідає рис. 1.3б. На рис. 1.3в темні зерна, показані на рис. 2б, виділяються і стають плоскими після полірування, що вказує на те, що вони мають більшу твердість, ніж зерна світлої фази.

На рис. 1.3в також можна побачити велику кількість нановключень. За даними елементного аналізу, більшість із них є частинками оксиду Al. Ці нановключення мають сильний вплив на магнітну структуру всередині зерен темної фази, оскільки вони закріплюють доменні стінки. Це, як правило, знижує магнітну м'якість матеріалу і збільшує коерцитивну силу та ширину петель гістерезису. Щоб з'ясувати склад темної та світлої фаз у S2, аналіз EDX був проведений на великій площі, яка була попередньо відсканована в MFM. На рис. 1.4а показано зображення SEM та виділена область, яка обрана для дослідження EDX. На зображенні чітко видно межі зерен, що допомагає вибрати правильне місце для порівняння з відповідними магнітними картами.

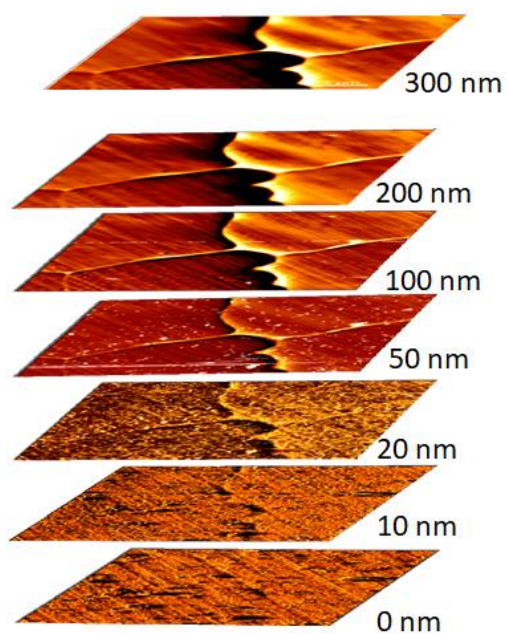


Рисунок 1.2 – Карти фазового зсуву зразка S1, що ілюструють появу магнітної структури зі збільшенням висоти над зразком. Висота для кожного зображення показана на рисунку [1].

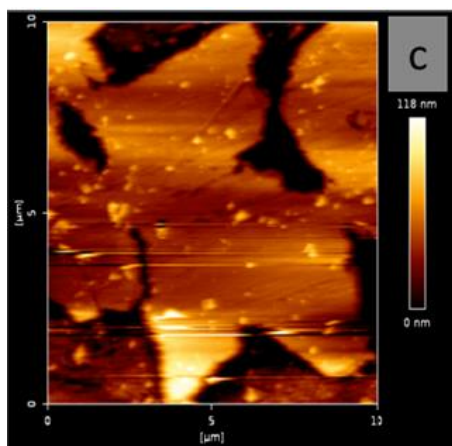
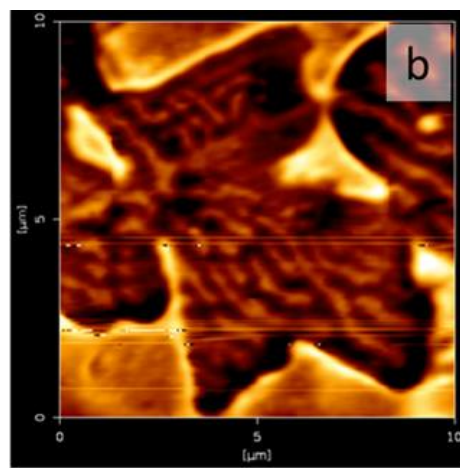
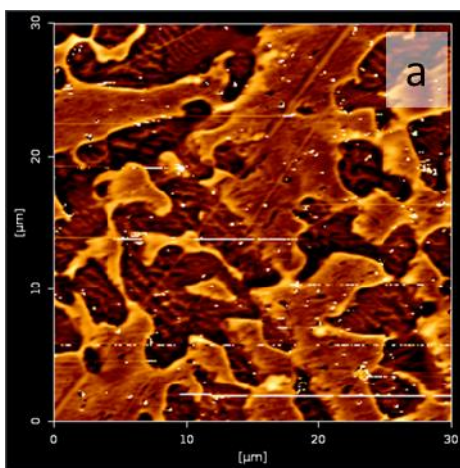


Рисунок 1.3 – Великомасштабні (а) і дрібномасштабні (б) карти фазового зсуву для зразка S2. На карті (в) показано топографію області, що відповідає зображенню (б) [1].

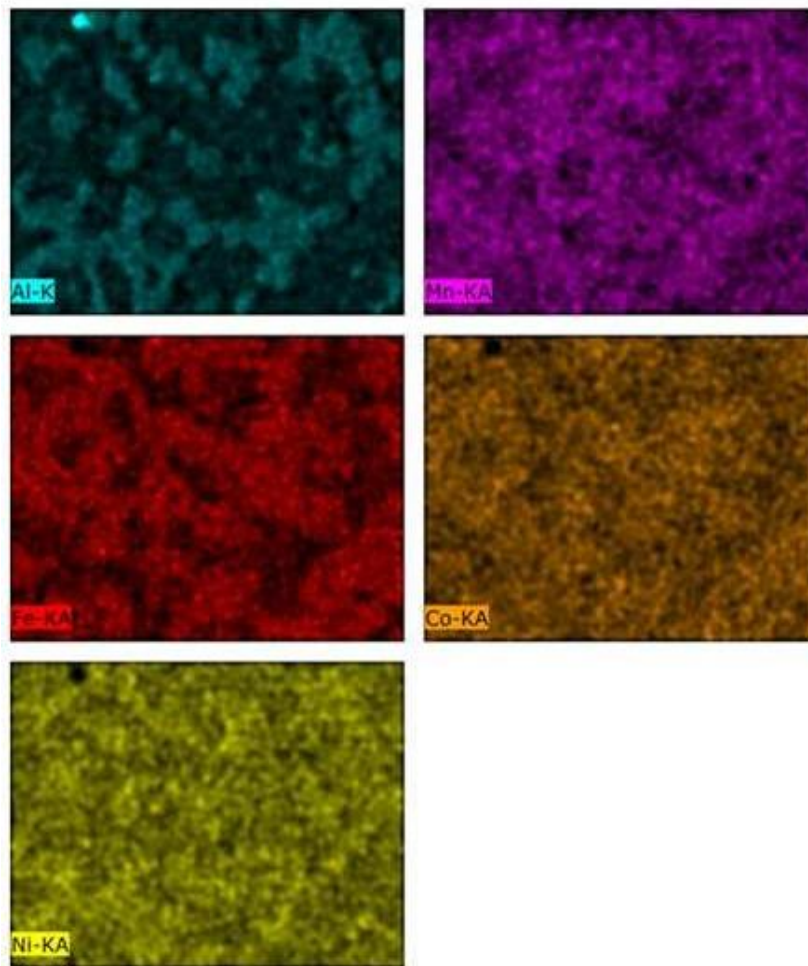
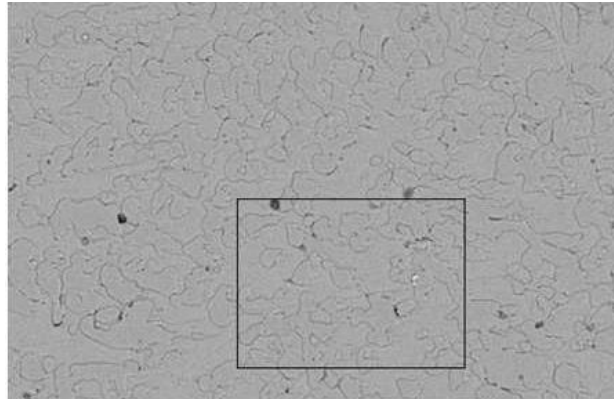


Рисунок 1.4 – Зображення SEM поверхні зразка S2 з виділеною ділянкою для кількісного аналізу EDX. (б) – карти EDX різних елементів, що відповідають виділеній ділянці на зображеній на позиції (а) [1].



На рис. 1.4 наведені EDX-карти складових елементів для виділеної області для сканування на рис. 1.4а. Найбільша різниця між зернами спостерігається в вмісті Al і Fe, які знаходяться в антикореляційній залежності один з одним. Інтенсивність сигналу Mn, ймовірно, відповідає інтенсивності сигналу Al на картах, хоча розподіл Mn є більш розсіяним, ніж розподіл Al і Fe. Co та Ni розподілені більш рівномірно, ніж інші елементи. На рис. 1.5 показано порівняння між магнітною картою MFM та елементною картою Al в одній області зразка. Карта Al дещо повернута для максимальної відповідності напрямку сканування в MFM, і має прозорість зображення 30%.

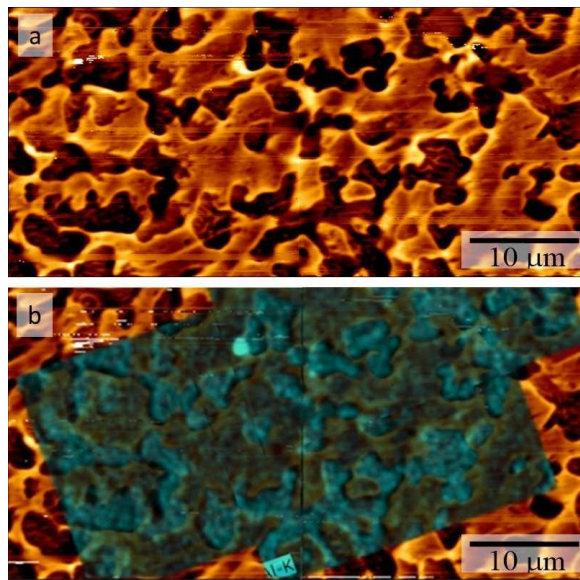


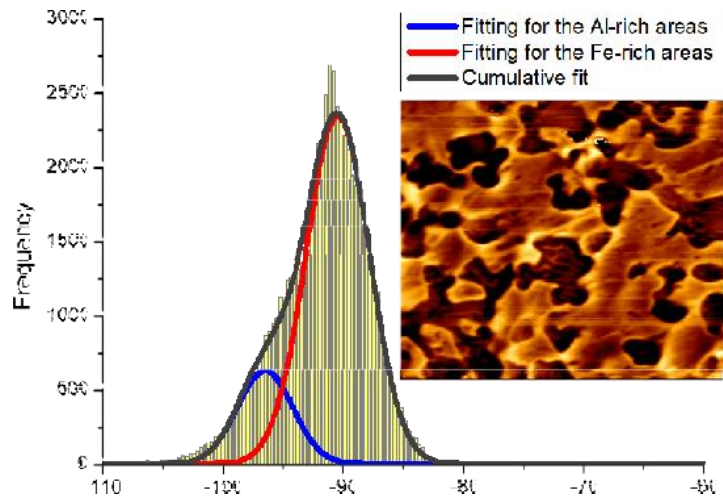
Рисунок 1.5 – Магнітна карта MFM та (б) та сама магнітна карта MFM, накладена на елементну карту EDX Al. Темні ділянки на карті MFM відповідають зернам, які збагачені Al [1].

На рис. 1.5б яскравий синій колір відповідає вищій концентрації Al і добре збігається з темними ділянками домену на рис. 1.5а. Елементний вміст фаз з високою та низькою концентрацією Al було уточнено шляхом аналізу EDX-карт, показаних на рис. 1.2 і 1.5. Фаза, збагачена Al, має такий елементний склад: Fe -  $22,2 \pm 1,4\%$ , Ni -  $24,4 \pm 1,0\%$ , Co -  $23,1 \pm 0,7\%$ , Mn -  $12,0 \pm 0,6\%$  та Al -  $18,4 \pm 0,9\%$ . Вміст елементів у збагаченій Fe фазі був таким: Fe -  $28,5 \pm 1,0\%$ ,

Ni -  $22,7 \pm 0,5$  %, Co -  $26,2 \pm 1,0$  %, Mn -  $12,1 \pm 0,9$  % та Al -  $10,5 \pm 1,0$  %. Цікаво, що концентрація Mn однакова в обох фазах, а кількість Ni та Co відрізняється лише на 1,7 та 3,1 % відповідно. Навпаки, у темній фазі, збагаченій Al, концентрація Fe на 6,3 % менша, а концентрація Al на 7,9 % вища, ніж у збагаченій Fe фазі, яка виглядає яскравіше на зображеннях MFM.

Таким чином, для кількісного аналізу вимірювань MFM в сплаві було оцінено максимальне значення фазового зсуву MFM. Фазовий зсув MFM — це градієнт сили магнітної взаємодії між двома магнітними диполями, моменти яких вирівняні вздовж однієї осі z. На рис. 1.6 визначене середнє значення фазового зсуву MFM за гауссовим підходом отриманої гістограми. Детальні параметри підгонки наведені в таблиці під графіком гістограми. Спостерігається пікове розщеплення інтенсивності гістограми. Це означає, що зерна з більшим вмістом Al, зображення яких добре збігається з темними зернами на зображенні MFM, мають більш негативний фазовий зсув (розрахований як  $-96,5$  градусів з використанням підгонки Гаусса), таким чином, притягуючи сильніше зонд MFM [12]. Навпаки, збагачена атомами Fe область (світла область у фазовому зсуві MFM) все ще має негативне значення фазового зсуву ( $-90,5$  градусів), але цей пік трохи зміщений вправо від вищезгаданого піку гістограми, що означає слабшу магнітну область. Загалом, через велику магнітну енергію темні зерна, збагачені Al, мають сильнішу тенденцію до розпаду на магнітні домени, і демонструють добре виражену смугасту структуру (див. рис. 2а, б та рис. 4а).

Отже, методом магнітно-силової мікроскопії у високоентропійному сплаві  $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$  з номінальним значенням  $x = 0,3$  спостерігали дві різні магнітні фази. Поєднання цієї методики з енергодисперсійним рентгенівським аналізом у скануючому електронному мікроскопі, однієї і тієї самої ділянки зразка, дозволило визначити елементний вміст обох фаз. Методом розрахунку гістограм фазового зсуву MFM було показано, що одна з них, яка має високу концентрацію Al і низьку концентрацію Fe, демонструє найсильнішу магнітну взаємодію. Отримані магнітні карти відображають високу



Mode	Gaussian		
Equation:	$y=y_0+A/(w*\sqrt{\pi})*\exp(-4*\ln(2)*(x-x_c)^2/w^2)$		
R-Square	0.99122		
		Value	Standard Error
Peak 1	y0	6.92784	3.89628
Peak 1	x0	-96.50985	0.24224
Peak 1	A	3570.96079	390.20610
Peak 1	w	5.41967	0.38942
Peak 2	y0	6.92784	3.89628
Peak 2	x0	-90.51409	0.07324
Peak 2	A	15358.45327	397.69642
Peak 2	w	6.18085	0.12548

Рисунок 1.6 – Гістограма фазового зсуву MFM, що відповідає збагаченням атомами Al і Fe магнітним доменам. Фаза, збагачена Al, є більш магнітною, оскільки вона має гістограму, зміщену до більш негативних значень, як розраховано відповідно до моделі Гауса [1].

магнітну енергію та смугасту доменну структуру в сильнішій магнітній фазі з більшою концентрацією Al. На структуру домену також, мабуть, впливає наявність нановключень і деформацій, що виникають під час полірування зразків. Зразки з  $x = 0,09$  та  $0,08$  виглядають магнітно однорідними з спостережуваними відмінностями, можливо, через різну кристалографічну орієнтацію зерен. Дослідження висвітлює магнітну поведінку сплавів  $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$  і може допомогти у розробці методик формування високоентропійних сплавів із прогнозованими магнітними властивостями для широкого промислового застосування.

## 2 МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

### 2.1. Одержання зразків багатокomпонентних плівкових сплавів

Для отримання зразків багатокomпонентних плівкових сплавів використовувалася промислова вакуумна установка (вакуумний універсальний пост) ВУП-5 (тиск залишкових газів  $10^{-3}\dots 10^{-4}$  Па), пристосована до наших потреб.

Принципова схема цієї установки наведена на рис. 2.1. Основними її складовими є робочий об'єм (1) і відкачна система. Відкачна система складається з механічного насосу 2НВД-5ДМ (3), який створює попереднє розрідження, та пароструменевого насосу НВДН-160 (2) – для одержання високого вакууму. Електромагнітні клапани (4) і (5) дозволяють проводити попереднє відкачування дифузійного насосу або робочого об'єму за допомогою механічного насосу. Між камерою і дифузійним насосом встановлено клапан

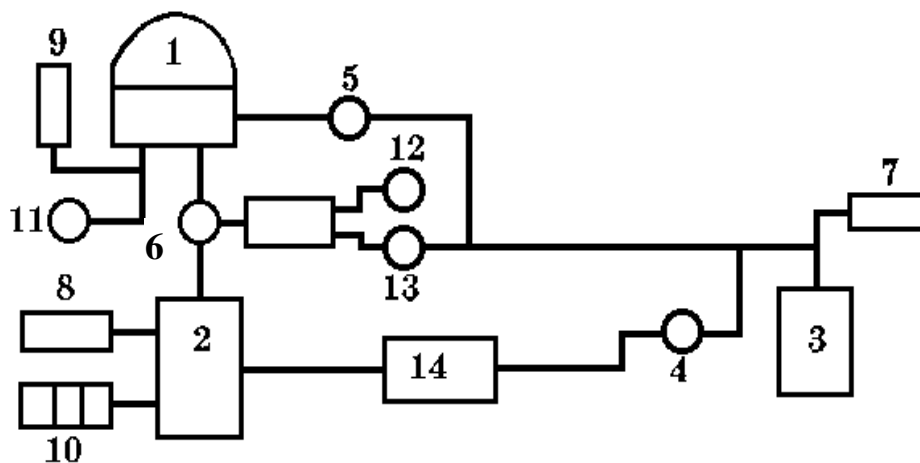


Рисунок 2.1 – Схема вакуумної установки ВУП-5М: 1 – робочий об'єм;

2 – дифузійний насос; 3 – форвакуумний насос; 4, 5, 11-13 – електромагнітні клапани, 6 – клапан пневматичного типу; 7-10 – датчики для вимірювання тиску;

14 – форбалон

пневматичного типу (6). Для вимірювання низького вакууму у системі призначена лампа термопарного типу ПМТ-2 (9), в той час як високий вакуум вимірюється лампою ПМІ-2 (10). Клапан (11) використовується для напуску повітря до робочої камери, а клапани (12), (13) – для обслуговування робочого клапана.

Одержання багатокомпонентних плівкових сплавів на основі Fe, Co, Ni, Cr, Al та Cu товщиною 20 – 100 нм здійснювалося методом одночасної або пошарової конденсації з наступним відпалюванням при температурі 700 К в умовах надвисокого безмасляного вакууму. При пошаровій конденсації зразків в якості випаровувачів міді, хрому та алюмінію використовувалися вольфрамові стрічки. Шари сплаву  $Fe_xNi_{1-x}$  та кобальту одержували електронно-променевим випаровуванням за допомогою двоанодної діодної гармати. Для отримання шарів  $Fe_xNi_{1-x}$  використовувалися масивні сплави потрібного складу. Схема однієї частини (одного з двох анодного і катодного вузлів) двоанодної гармати наведена на рис. 2.2. Вона складається з анодного і катодного вузлів, які з'єднані керамічними ізоляторами. Висока напруга до аноду гармати ( до 3 – 3,5 кВ) подається за допомогою переполюсованого серійного блоку живлення БП-100.

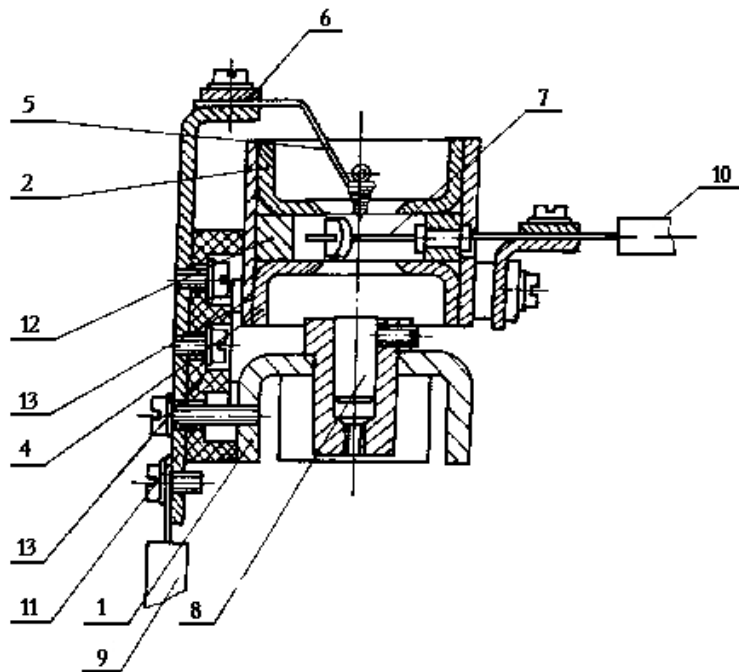


Рисунок 2.1 – Електронно-променева гармата діодного типу:

1,3 – корпус; 2,4 – екран; 5,8 – тигель; 6 – затискач; 7 – нитка розжарення; 9, 10 – провід; 11 – кронштейн; 12 – блок розжарення; 13 - ізолятор

Плівки конденсувались на скляні та ситалові підкладки (при дослідженні магнітоопору) кристали NaCl (для дослідження структури та фазового складу) та пластини вольфраму (для дослідження електронної структури). Схема системи “випаровувачі-підкладка” приведена на рис. 2.3.

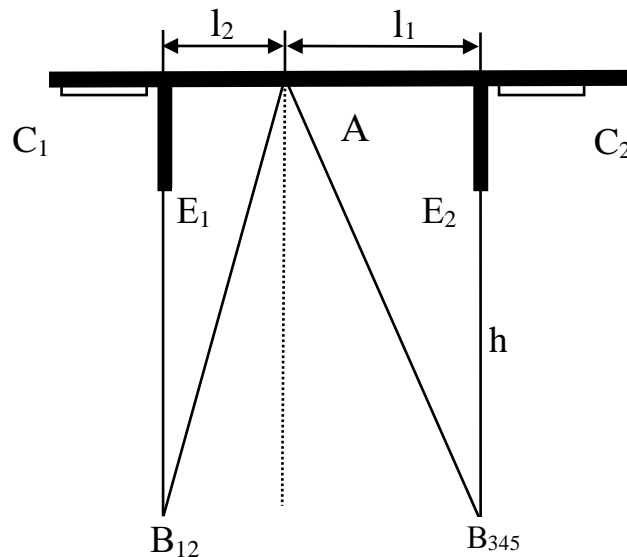


Рисунок 2.1 – Схема системи випаровувач - підкладкотримач:

$B_{12}, B_{345}$  – випаровувачі;  $\Pi_1, \Pi_2$  – скляні пластинки для вимірювання товщини;  
 $E_1, E_2$  – екрани.

Для випаровувача з малою площею поверхні можна записати:

$$\frac{d}{d_0} = \left[ 1 + \frac{l^2}{h^2} \right]^{-2}, \quad (2.1)$$

де  $d_0$  – товщина плівки на підкладці в точці, що знаходиться проти випаровувача;

$l$  – відстань від цієї точки до площадки  $dS$ ;

$h$  – відстань від випаровувача до підкладки.

Звідси, знаючи величину  $d_0$ , можна розрахувати товщину  $d$  плівки, осадженої в деякій точці А підкладки:

$$d = \frac{d_0}{\left[1 + \left(\frac{l}{h}\right)^2\right]^2}. \quad (2.2)$$

Для довільної точки підкладотримача за формулою (2.2) можна розрахувати товщину плівок  $d_1$  та  $d_2$ , одержаних від кожного з випаровувачів:

$$d_1 = \frac{d_{01}}{\left[1 + \left(\frac{l}{h}\right)^2\right]^2} \quad \text{і} \quad d_2 = \frac{d_{02}}{\left[1 + \left(\frac{l}{h}\right)^2\right]^2}. \quad (2.3)$$

Товщина багат шарових плівок визначалась як сума товщин шарів, які були б осаджені при випаровуванні тільки одного компоненту:

$$d = d_1 + d_2 + \dots + d_n.$$

Для вимірювання  $d$  використовувалися підкладотримачі з спеціальними екранами. Це дозволяло осаджувати на скляних пластинах, розміщених навпроти випаровувача, плівку тільки однієї речовини і потім виміряти  $d_0$ .

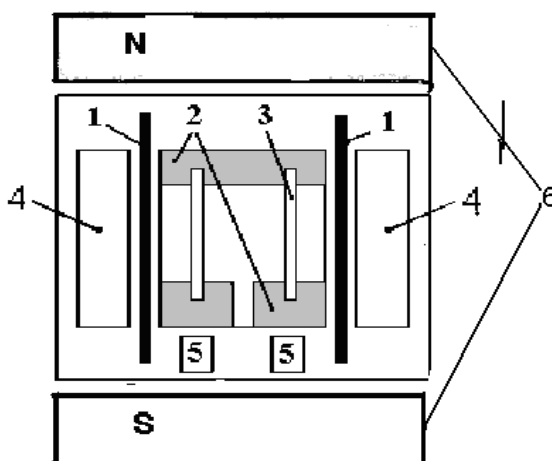


Рисунок 2.4 – Схема підкладотримача:

- 1 – екрани; 2 – контакти; 3 – зразки; 4 – скляні пластини;
- 5 – монокристали NaCl та пластини W; 6 – постійний магніт.



Конструкція підкладкотримача дозволяла одержувати за одне напилення серію з 2 зразків приблизно однакової товщини, але з різним вмістом компонентів.

Шаруваті плівкові зразки можна було отримувати як без зовнішнього орієнтуючого магнітного поля так і в зовнішньому орієнтуючому магнітному полі при кімнатній температурі. Конструкція підкладкотримача зображена на рис. 2.4.

Для визначення швидкості конденсації плівок були отримані серії одношарових плівок  $\text{Fe}_x\text{Ni}_{1-x}$ , Co, Cu, Al та Cr товщина яких визначалася за допомогою інтерферометра Лінника (МІІ-4) з лазерним джерелом світла (мініатюрний напівпровідниковий лазер з  $\lambda = 647 \text{ нм}$ ) та комп'ютеризованої системи реєстрації інтерференційної картини (цифрова фотокамера з передачею зображення в комп'ютер). Це дозволяло істотно спростити процес вимірювання товщини й обробляти зображення отриманої інтерференційної картини безпосередньо на екрані комп'ютера. На рис. 2.5, як ілюстрація, представлена типова інтерференційна картина від плівкового зразка з  $d = 84 \text{ нм}$ . При такому способі вдається зменшити похибку виміру товщини  $d$ , особливо в області  $d < 50 \text{ нм}$ . Відносна похибка вимірювань товщини плівок в інтервалі 50...200 нм становить 10%. При  $d < 50 \text{ нм}$  – 20...30%.

Для осадження багатокомпонентних плівкових сплавів застосовувалося також магнетронне розпилення. Особливістю нашої технології було використання мозаїчних мішеней на відміну від традиційного використання легованих мішеней, сформованих плавкою або литтям. Основною перевагою цього методу осадження є зміна стехіометрії шляхом зміни площі поверхні цільового сегмента. В якості підкладок використовуються пластини природно окисленого монокристалічного Si(111). Температура підкладки становила 300 К і залишалася незмінною в процесі конденсації. Тонкоплівкові зразки потім проходили термообробку при температурі 700 К протягом 60 хв в атмосфері Ar/H<sub>2</sub>. Відпалювання зразків проводилося з метою поліпшення їх гомогенізації, кристалічної структури і заліковування структурних дефектів.

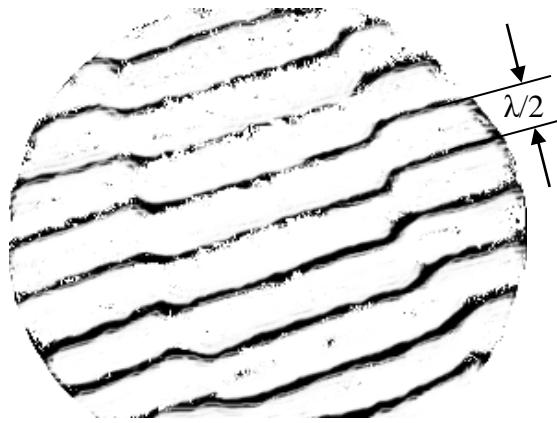


Рисунок 2.5 – Інтерференційна картина для розрахунку товщини плівки

## 2.2 Методика дослідження магнітоопору зразків

Експерименти по відпалюванню для стабілізації структурного стану плівок і вимірювання залежності електроопору від температури, проводилися в спеціально виготовленій установці в умовах надвисокого безмасляного вакууму ( $10^{-6} \div 10^{-7}$  Па) у постійному магнітному полі напруженістю  $H=8$  кА/м (100 Ое).

Принципова схема цієї установки приведена на рис.2.6.

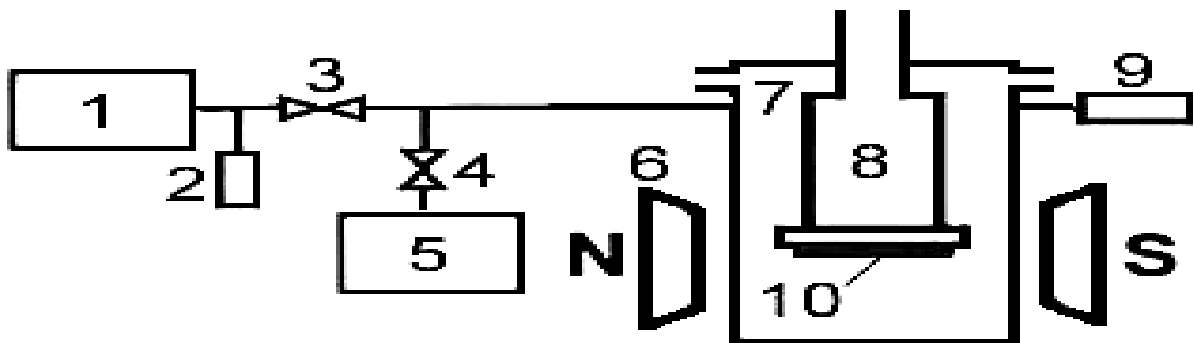


Рисунок 2.6 – Схема установки для відпалювання та вимірювання МО:

1 – механічний насос; 2, 9 – манометричні перетворювачі ПМТ-2 і ПМТ-32;

3, 4 – запірні вентиля ДУ-6 і ДУ-40; 5 – магніторозрядний насос;

6 – електромагніт; 7 – робоча камера; 8 – ємність для рідкого азоту;

10 - зразки

У цій установці проводилися і виміри магнітоопору (МО) зразків. Основними елементами установки є робоча камера (7), яка може прогріватися до 700 К, посудина: об'єм для рідкого азоту (8) та електромагніт (6). Насоси (1) та (5) дозволяють за допомогою комутуючих вентилів (3) та (4) проводити відкачування робочої камери до попереднього ( $10^{-1}$  Па, механічний форвакуумний насос 2НВД-5М) і надвисокого ( $10^{-7}$  Па, магніторозрядний насос НМДО-0,25) вакууму. Робоча камера виготовлена із діамантної нержавіючої сталі. Камера розташована між полюсами електромагніту, що створює у міжплоскосному зазорі однорідне магнітне поле з напруженістю до  $96 \text{ кА/м}$  (120 мТл). Електромагніт може обертатися навколо своєї осі в горизонтальній площині, що дозволяє змінювати напрямок магнітного поля відносно досліджуваних зразків.

Плівкові зразки на скляних підкладках прикріплюються на плоскому дні тонкостінної ємності (8) з нержавіючої сталі, привареної у верхній своїй частині до зйомного фланця робочої камери. На цьому ж фланці розміщені всі необхідні струмоводи. Бічна поверхня ємності може прогріватися ніхромовим нагрівачем до 700 К. Така конструкція тримача зразків дозволяє, заливаючи в ємність (7) рідкий азот, охолоджувати зразки до 100 К, чи нагрівати їх до 700 К, що давало можливість проводити відпалювання зразків (як в магнітному полі, так і без нього), а також проводити вимірювання повздовжнього та поперечного МО (повертаючи електромагніт на  $90^\circ$ ). Температура зразків контролювалася за допомогою мідь-константанової термопари з похибкою  $\pm 10$  К (з використанням універсального цифрового вольтметра Щ1516).

### **2.3. Методика дослідження магнітних властивостей плівок**

Магнітні властивості багат шарових плівок та зразків магнітних плівкових сплавів досліджувались методами вібраційної та СКВІД-магнетометрії. Дослідження магнітних властивостей плівок сплавів проводилося на надпровідному квантовому інтерференційному пристрою – СКВІД - магнетометрі фірми Quantum Design. Даний магнетометр за своїми технічними

характеристиками та принципом роботи є надчутливим сучасним приладом, що дозволяє провести дослідження магнітних властивостей матеріалів при низьких температурах вимірювання  $T_{\text{вимір.}} = 1,9 - 350 \text{ K}$  (з можливістю нагріву зразка до  $T_{\text{відп.}} = 800 \text{ K}$ ) та у магнітних полях з високою напруженістю  $-70 \text{ кЕ} \leq H \leq 70 \text{ кЕ}$ . З допомогою даного приладу можна дослідити магнітні властивості плівок, побудувати польові залежності намагніченості при різних температурах вимірювання. Застосування методики ZFC-FC є важливим для дослідження магнітних властивостей гранульованих плівкових матеріалів. Дослідження магнітних властивостей зразків методом вібраційної магнітометрії здійснювалося у двох орієнтаціях зразка відносно зовнішнього магнітного поля: лінії індукції магнітного поля були направлені паралельно поверхні зразка (паралельна геометрія) та лінії індукції магнітного поля були направлені перпендикулярно до поверхні зразка (перпендикулярна геометрія). Принцип дії вібраційного магнетометру базується на вимірюванні поля зразка, який коливається в однорідному магнітному полі зі сталою частотою та амплітудою. У вібраційному магнітометрі зразок кріпиться на тримачі з кварцевого скла і приводиться у коливальний рух у системі чотирьох вимірювальних контурів (катушок). При цьому вісь коливань була паралельна площині вимірювальних контурів, а магнітний момент зразка, індукований зовнішнім магнітним полем, орієнтувався перпендикулярно їх площині. Контури розташовувалися на полюсах електромагніту, який є джерелом магнітного поля. На кожному полюсі пари контурів з'єднані «зустрічно», а пари між собою – «послідовно». При русі зразка вгору збільшувався магнітний потік у верхніх контурах і зменшувався у нижніх. Електрорушійні сили, що виникають у них, мають різні знаки, але завдяки зустрічному включенню контурів, додаються. Подібним чином реалізується ситуація при русі зразка вниз. У той же час зміна однорідного поля електромагніту створює взаємно компенсуючі сигнали в контурах. Така система з'єднання вимірюючих контурів дозволяла виділити корисний сигнал від зразка і мінімізувати паразитні сигнали від зовнішніх однорідних полів. Методика дослідження магніторезистивних властивостей.

Магніторезистивні властивості зразків плівкових сплавів досліджували також на програмно-апаратному комплексі, де вимірювання проводилося при кімнатній температурі. Вимірювання здійснювали під впливом прикладеного магнітного поля з амплітудою в діапазоні  $H_{\text{макс}} = \pm 4,5$  кЕ з використанням 4-точкової схеми вимірювання. Струм у площині зразка становив 1 мА, а вимірювання опору проводили у двох різних геометріях. У першому випадку прикладене поле  $H$  знаходилось у площині плівки та паралельно струму (поздовжня геометрія), а у другому – прикладене поле знаходилось у площині плівки, але перпендикулярно струму (поперечна геометрія). Амплітуду ГМО розраховували за співвідношенням:

$$\text{ГМО (\%)} = \Delta R/R(0) \times 100 = (R(H) - R(0))/R(0) \times 100, \quad (2.4)$$

де  $R(0)$  і  $R(H)$  - опір плівки без магнітного поля і за наявності поля  $H$  відповідно.

Для дослідження низькотемпературних магніторезистивних, а у деяких випадках і магнітних властивостей зразків плівкових сплавів, використовувався прилад PPMS Model 6000 (фірми Quantum Design). На даному приладі можна виконувати вимірювання магнітних та магніторезистивних властивостей у температурному інтервалі  $T_{\text{вимір.}} = 1,9 - 400$  К у магнітному полі  $H_{\text{макс}} = \pm 90,0$  кЕ. Керувати роботою даного приладу можна віддалено, використовуючи програмне забезпечення PPMS MULTIVU SOFTWARE під ОС Windows. Зразок під'єднується до тримача контактними дротами. Можна проводити вимірювання магнітоопору у поперечній та поздовжній геометріях. Зразок поміщався в камеру, в яку підводиться рідкий кріоагент і можна проводити вимірювання магнітоопору при низьких температурах, як показано. Такі вимірювання є особливо цікавими для зразків, що характеризуються гранульованим суперпарамагнітним станом.

### 3. МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ТА МАГНІТНІ ВЛАСТИВОСТІ БАГАТОКОМПОНЕНТНИХ ПЛІВКОВИХ СПЛАВІВ

#### 3.1 Магніторезистивний ефект у багатокомпонентних плівкових сплавах

##### 3.1.1 Магнітоопір двокомпонентних плівкових сплавів

Для кращого розуміння та коректного обговорення результатів дослідження магніторезистивних властивостей багатокомпонентних плівкових сплавів було проведено дослідження магніторезистивного ефекту дво- та трикомпонентних плівкових сплавів, які входили до складу багатокомпонентних сплавів. Розглянемо результати цих досліджень для плівкових еквіатомних сплавів FeCo, FeNi та CoNi в широкому інтервалі товщин.

У феромагнітних плівках наявність доменної структури обумовлює (як і в масивному матеріалі) специфічний характер магніторезистивних властивостей. Зокрема, існування зон спонтанної намагніченості призводить до того, що на носії заряду діє не тільки зовнішнє магнітне поле, а й магнітне поле, яке виникло в результаті переорієнтації доменів під його впливом. Тому на магніторезистивні властивості у феромагнетиках першочергово впливає власна намагніченість зразка.

Магнітоопір феромагнітних матеріалів різний у різних напрямках як за величиною, так і за знаком, тобто є анізотропним. Коли повністю розмагнічений зразок поміщують у відносно слабке магнітне поле, то його опір збільшується при паралельній орієнтації векторів густини струму та індукції (або напруженості) зовнішнього магнітного поля і зменшується – у випадку взаємно перпендикулярного їх розташування. Після досягнення насичення електричний опір феромагнетика зменшується для обох конфігурацій струму і індукції магнітного поля [55]. Величину анізотропного магнітоопору отримують шляхом екстраполяції зміни питомого опору при зміні магнітної індукції від сильних полів до  $B = 0$ .

З феноменологічної теорії анізотропного магнітоопору слідує вираз для результуючого опору полікристалічних зразків, який можна записати у вигляді [56]:

$$\rho = \rho_+ + (\rho_{\parallel} - \rho_+)/3 \equiv \bar{\rho} \quad (3.1)$$

У випадку  $\mathbf{B} \parallel \mathbf{M}$  маємо  $\rho = \rho_{\parallel}$ , а коли  $\mathbf{B} \perp \mathbf{M}$ , то  $\rho = \rho_+$ . Отже, величину магнітоопору можна визначити за співвідношенням:

$$\Delta\rho/\rho = (\rho_{\parallel} - \rho_+)/\bar{\rho} \quad (3.2)$$

Характерною особливістю для поздовжнього і поперечного ефекту магнітоопору, досліджених нами бінарних еквіатомних плівкових сплавів FeCo, FeNi та CoNi був немонотонний характер зміни опору в залежності від індукції зовнішнього магнітного поля. На залежностях (рис. 4.1) величини магнітоопору  $\Delta R/R(B_c)$  від індукції зовнішнього магнітного поля  $B$  фіксуються мінімум для поздовжнього ( $\parallel$ ) магнітоопору та максимум для поперечного (+) МО. При повторному намагнічуванні плівки без зміни напрямку магнітного поля згадані екстремуми не спостерігається, а електричний опір монотонно зростає або спадає виходячи на насичення. Тобто, для всіх досліджуваних тонкоплівкових бінарних зразків сплаву як свіжосконденсованих, так і відпалених при різних температурах, характерним є анізотропний магнітоопір (АМО) величиною 0,05 – 3 % в залежності від елементного складу, товщини та умов термообробки. Такий характер магнітоопору можна пояснити спін-орбітальною взаємодією [58]. Вона виявляється у перемішуванні  $d$ -станів із напрямками спінів «вгору» та обумовлює ймовірність розсіювання спінових станів «вгору» («вниз») і спінових станів «вниз» («вгору»). У сплавах перехідних металів, провідність обумовлюють вільні електрони (наприклад електрони із спінами «вгору»). Коли відбувається перемішування спінових станів «вгору» і «вниз», розсіювання цих станів збільшує  $\rho \uparrow$ . При цьому кількість  $d$ -станів на рівні Фермі зменшується і, як наслідок,  $\rho \downarrow$  зменшується. Таким чином, внаслідок спін-орбітальної взаємодії, отримуємо:

$$\rho \uparrow = \rho_{0\uparrow} + k\rho_{0\downarrow} \quad (3.3)$$

$$\rho_{\downarrow} = \rho_{0\downarrow} + k\rho_{0\uparrow} \quad (3.4)$$

де  $k$  – константа. Величина  $k$  залежить від кута між напрямком струму та намагніченістю, обумовлюючи анізотропний магнітоопір. Слід зауважити, що АМО залежить також від товщини плівки та температури термообробки. При зменшенні температури вимірювання до 120 К загальна картина польових залежностей суттєво не змінюється, відбувається лише незначний зсув піків у сторону сильніших полів. Слід відмітити, що індукція магнітного поля, при якій фіксуються екстремуми на польових залежностях, відповідає коерцитивній силі плівок.

На рис. 3.2 в якості ілюстрації наведені розмірні залежності для повздовжнього та поперечного магнітоопору відпалених при температурі 700 К плівкових сплавів FeCo, FeNi та CoNi. Як бачимо з рисунка 4.1 розмірні залежності величини МО для відпалених структурно-суцільних плівок ( $d > 20$  нм) сплавів Fe<sub>0,5</sub>Co<sub>0,5</sub> мають монотонний характер. Величина повздовжнього і поперечного МО лише збільшується при збільшенні товщини зразків і досягає значення 0,2 % за кімнатної температури при товщині близько 80 нм. Для одношарових плівок з іншої концентрацією компонент розмірні залежності мають аналогічний характер.

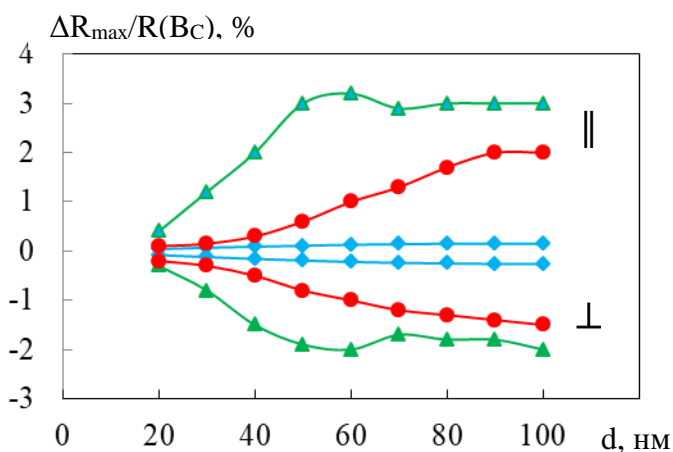


Рисунок 3.2 – Розмірна залежність повздовжнього (||) та поперечного (⊥) магнітоопору плівкових сплавів FeCo (◆), FeNi (●) та CoNi (▲)

Розмірні залежності величини МРЕ сплавів CoNi вказують на наявність локального максимуму для величини повздовжнього МО і локального мінімуму для поперечного МО в області товщин 55-65 нм. Подібна закономірність



відзначалася в роботі [35] для плівок Ni. Згідно з [39], у цій області товщин відбувається перехід від неелівської форми доменних стінок, яка властиві плівкам з малими товщинами, до блохівської форми, яка спостерігається у плівках великих товщин. Очевидно, у вказаному діапазоні товщин можуть спостерігатися складні перехідні доменні стінки, що приводить до порівняно більшої за абсолютною величиною зміни повздовжнього опору в процесі перемагнічування. Відзначимо, що на сьогодні питання про внесок меж доменів в МО та особливості МО, обумовлені різними типами стінок, не вивчені в достатній мірі. Це пов'язано як з експериментальними труднощами при вимірюванні розсіювання електронів провідності доменними стінками, так і з малим числом теоретичних робіт щодо цієї проблеми. Останнім часом почато створення теоретичних моделей, які описують вплив доменних стінок на електропровідність. Вони виходять з припущення про залежність ймовірності проходження доменної стінки електроном від напрямку його спіна. На основі розгляду процесів розсіяння в рамках подібної моделі в роботі [41] одержано вираз для додаткового МО за рахунок розсіювання електронів на доменних стінках:

$$\frac{\Delta R_w}{R} = \frac{2p_s}{(1-p_s)^2} (1 - \langle \cos \theta \rangle) \frac{\delta_w}{D},$$

де  $\Delta R_w$  – додатковий опір зумовлений доменними стінками;

$p_s$  – спін-залежний коефіцієнт розсіювання електрона доменною стінкою;

$\theta$  - кут між спіном електрона провідності і локальною намагніченністю домена;

$\delta_w$  – ширина доменної стінки;

$D$  – середній розмір домена.

Зміна типу стінок повинна супроводжуватися зміною як ширини стінки  $\delta_w$ , так і коефіцієнта розсіювання  $p_s$ , внаслідок чого додатковий МО для різних доменних стінок буде різним, а на залежності величини МО від товщини можуть виникати екстремуми.

Для тонких (товщина  $d < 20$  нм) плівок величина магнітопору стає меншою за 0,01 %, що може бути пояснене також на основі правила Колера. Як було

показано раніше, в цій області товщин відбувається перехід до острівцевих плівок, що супроводжується, зокрема, різким збільшенням електричного опору і повинно приводити до зменшення величини МО.

Були проведені дослідження магніторезистивного ефекту плівкових сплавів за різних температур у температурному інтервалі 120 – 600 К. На рис. 3.3 як ілюстрація наведені температурні залежності величини МО для термостабілізованих за температури 700 К плівкових сплавів FeCo, FeNi та CoNi.

Як видно з рисунка 3.3 величина поздовжнього та поперечного магнітоопору зменшується з підвищенням температури. Як правило магнітоопір зменшується у 1,2 – 1,5 рази при зміні температури від 120 до 300 К. Величина анізотропного магнітоопору зменшується практично лінійно з ростом температури.

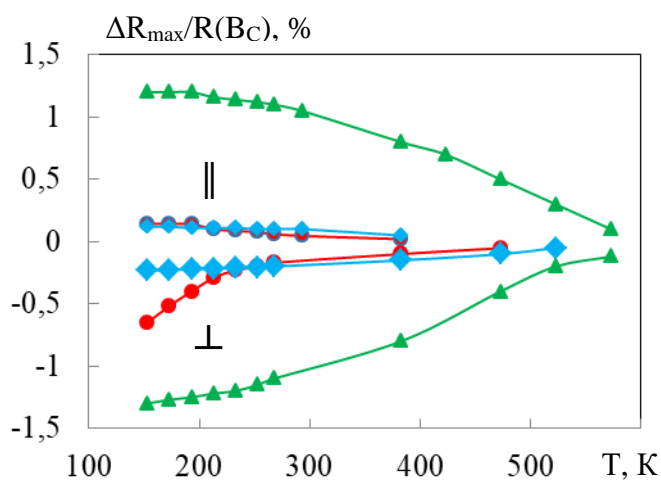


Рисунок 3.3 – Залежність поздовжнього (||) та поперечного (⊥) магнітоопору від температури вимірювання плівкових сплавів FeCo (◆), FeNi (●) та CoNi (▲)

Збільшення величини магнітоопору при зниженні температури обумовлено збільшенням намагніченості насиченості до коефіцієнту магнітної анізотропії.

### 3.1.2 Магнітоопір трикомпонентних плівкових сплавів

Розглянемо результати дослідження магніторезистивного ефекту в плівках сплаву  $(\text{Fe}_{0,8}\text{Co}_{0,2})_x\text{Cu}_{1-x}/\text{П}$  товщинами  $d = 20\text{-}50$  нм і  $x = 0,5\text{-}0,9$ . Для зразків з  $x = 0,4\text{-}0,9$  відпалених при температурах 500 та 700 К зразків фіксується анізотропний характер польових залежностей магнітоопору (позитивний поздовжній та негативний поперечний магнітоопір). На рис. 3.4а показано типові залежності поздовжнього та поперечного магнітоопору від індукції зовнішнього магнітного поля для плівок сплаву  $(\text{Fe}_{0,8}\text{Co}_{0,2})_x\text{Cu}_{1-x}/\text{П}$   $d = 40$  нм і  $x = 0,5$  (температура вимірювання  $T_B = 300$  К). Як видно з рисунка, ці залежності аналогічні відповідним залежностям для одношарових плівок феромагнітних металів та сплавів [8 – 10]. При таких концентраціях магнітної компоненти формується нескінченний феромагнітний кластер

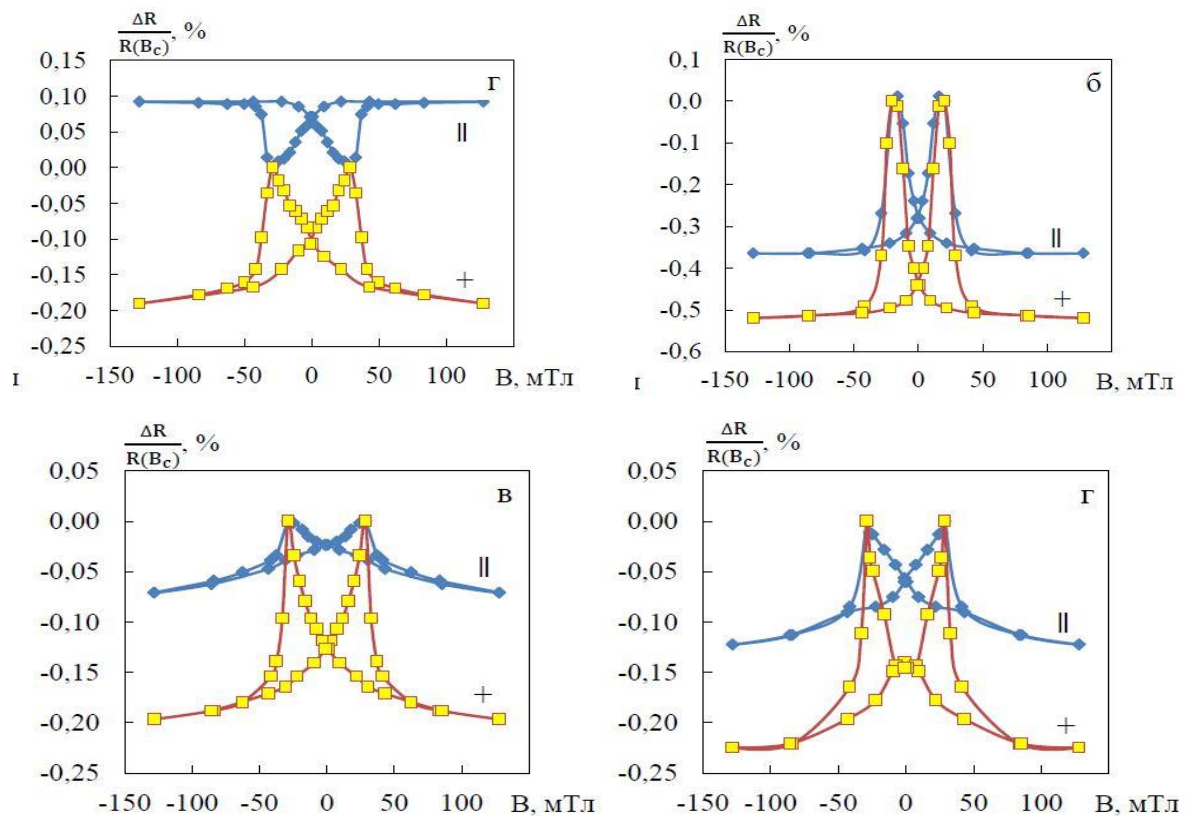


Рисунок 3.4 – Польові залежності магнітоопору для плівки сплаву  $(\text{Fe}_{0,8}\text{Co}_{0,2})_x\text{Cu}_{1-x}/\text{П}$  відпалених при температурі 550 К (а, б) і 700 К (в, г) (а –  $x = 0,8$ ,  $d = 40$  нм; б, в, г –  $x = 0,5$ ,  $d_F = 40$  нм). Температура вимірювання, К: 300 (а, б, в) і 100 (г)

При збільшенні концентрації міді до 50 ат.% фіксується поява ізотропного характеру магнітоопору величиною 0,5-1% (рис. 3.4б). Причиною появи ізотропного магнітоопору є утворення гранульованого стану, що підтверджується електронно-мікроскопічними дослідженнями. У таких зразках реалізується механізм спін-залежного розсіювання електронів. Слід зазначити, що у вихідному стані для таких зразків, як і у випадку плівок зі вмістом міді менше 40 ат.%, спостерігався анізотропний характер магнітоопору. Отже, формування гранульованого стану відбувається в процесі відпалювання при температурі 550 К. При збільшенні температури відпалювання до 700 К характер польових залежностей не змінюється, а величина магнітоопору зменшується до 0,1-0,2% (рис. 3в). При цьому з'являється більша різниця між значеннями магнітоопору вимірюваних у поздовжній та поперечній геометріях. Причиною різної величини поздовжнього та поперечного магнітоопору є вплив анізотропного магнітоопору феромагнітної компоненти. Зменшення температури вимірювання до 120 К суттєво не впливає на форму польових залежностей, а лише приводить до зростання величини ізотропного МО у 1,2 – 1,8 рази (рис. 3.4г).

Були проведені дослідження залежності ізотропного магнітоопору від температури у температурному інтервалі 120 – 400 К. На рис. 3.5 як ілюстрація наведені температурні залежності амплітуди МО для термостабілізованих за температури 550 і 700 К зразків  $(\text{Fe}_{0,8}\text{Co}_{0,2})_x\text{Cu}_{1-x}/\text{П}$  ( $x = 0,5, d = 40$  нм).

Як видно з рисунка 3.5 величина ізотропного магнітоопору зменшується з підвищенням температури. Як правило магнітоопір зменшується у 2 – 2,3 рази при зміні температури від 120 до 400 К. Величина ізотропного магнітоопору

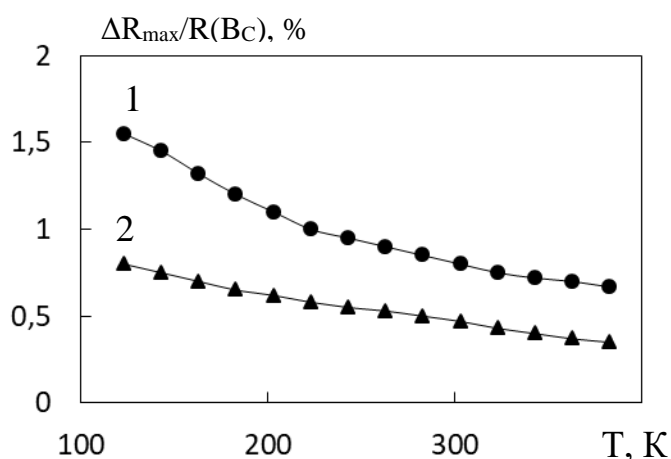


Рисунок 3.5 – Температурні залежності ізотропного магнітоопору для плівки сплаву  $(\text{Fe}_{0,8}\text{Co}_{0,2})_x\text{Cu}_{1-x}/\text{П}$  ( $x = 0,5, d = 40$  нм) відпаленої при температурі 550 К (1) і 700 К (2)

зменшується практично лінійно з ростом температури.

Виділяють два основних вклади в температурну залежність амплітуди ГМО: непружне розсіювання фононів та магнонне розсіювання. Фононне розсіювання не впливає на спін електронів. Однак, воно є спін-залежним внаслідок того, що густина електронних станів на рівні Фермі є різною для мажоритарної і міноритарної підзон. Фононне розсіювання скорочує довжину вільного пробігу, особливо, у немагнітній матриці. Це зменшує потік електронів між феромагнітними гранулами, що приводить до зменшення величини ізотропного магнітоопору. Внесок магнонного розсіювання при 300 К залежить від того, наскільки сильно температура Кюрі магнітного елемента відрізняється від кімнатної температури. Магнонне розсіювання спричинює переворот спіну електронів провідності, що призводить до змішування між двома каналами спінового струму.

Зі збільшенням температури відпалювання до 550 К істотних змін зазнає форма петель магніторезистивного гістерезису. Як і у випадку плівок Co/Ag/Co для плівок FeNi/Cu(Ag)/FeNi, відпалених при 550 К, з'являється анізотропний магнітоопір (АМО). Особливістю польових залежностей МО є неспівпадання їхніх піків для повздовжнього й поперечного МО. Для повздовжнього МО піки розташовані в більш слабких магнітних полях.

Розглянемо результати дослідження магніторезистивного ефекту в плівках сплаву  $(\text{FeNi})_x\text{Cu}_{1-x}/\text{P}$  товщинами  $d = 20\text{-}70$  нм і  $x = 0,5\text{-}0,9$ . Для плівок, відпалених при 700 К, зберігається АМО, петлі магніторезистивного гістерезису стають більш чіткими і піки польових залежностей для повздовжнього і поперечного МО співпадають краще. Зміщення піків при відпалюванні, можливо, пов'язане зі зміною природи й величини магнітної анізотропії. Відомо [18], що в полікристалічних пермалоєвих плівках напрямки легкого намагнічування орієнтуються вздовж магнітного поля, прикладеного під час випаровування. Природа і величина цієї анізотропії змінюється залежно від складу та температури магнітного відпалювання. За припущенням Нееля, механізм утворення одноосьової анізотропії побудований на тому, що коефіцієнти зв'язку спінів

різних атомних пар різні. При відпалюванні зв'язані атомні пари внаслідок дифузії займають позиції, що відповідають мінімальній енергії, вздовж поля. Створена таким чином анізотропія зберігається після охолодження внаслідок малої дифузії.

При зменшенні концентрації нікеля  $C_{Ni} = 10 - 20 \%$  може призводити до утворення гранульованого стану і як наслідок – виникнення спін-залежного розсіювання електронів. Слід відмітити, що дані електронно-мікроскопічних та електроннографічних досліджень підтверджують утворення гранульованого стану [47].

### 3.1.3. Концентраційні та польові залежності магнітоопору плівкових сплавів на основі $\text{Pu}$ і $\text{Cu}$

Було проведено дослідження магніторезистивних властивостей невідпалених та відпалених зразків плівкових сплавів на основі пермалою ( $\text{Fe}_{0,2}\text{Ni}_{0,8}$  ( $\text{Pu}$ )) та міді з різними частками пермалою  $x_{\text{Pu}}$  [58-62].

На рис. 3.6 приведено залежності величин ГМО від частки пермалою у плівковому сплаві, виміряні у поперечній (рис. 3.6 а) та поздовжній (рис. 3.6 б) геометріях. Для невідпалених плівок з часткою пермалою у сплаві  $0,31 \leq x_{\text{Pu}} \leq 0,49$  значення ГМО становили 0,02 – 0,05 % у полях до  $H_{\text{макс.}} = 4,5$  кЕ. Польові залежності магнітоопору таких зразків мали лінійний характер, не демонстрували гістерезису та не насичувалися у полях до 4,5 кЕ. Така поведінка магнітоопору свідчить, що структурний стан вказаних плівок відповідає ансамблю не взаємодіючих між собою суперпарамагнітних гранул. Це підтверджують результати дослідження структурного стану, виконані методом ПЕМ та досліджень магнітних властивостей методом вібраційної магнетометрії.

При збільшенні частки пермалою у сплаві до  $x_{\text{Pu}} = 0,66$  величина ГМО становила 0,21%, що є максимальним значенням для невідпалених зразків плівкових сплавів на основі  $\text{Pu}$  і  $\text{Cu}$  у даному випадку. На рис. 4 приведено польові залежності для зразка плівкового сплаву на основі  $\text{Pu}$  і  $\text{Cu}$  при частці пермалою  $x_{\text{Pu}} = 0,66$ . Відсутність насичення на польових залежностях магнітоопору свідчить про те, що структурний стан зразка відповідає такому, де суперпарамагнітні гранули розміщені у немагнітній матриці, а сили взаємодії між гранулами відсутні або не значні. Відпалювання даного зразка при температурі  $T_{\text{відп.}} = 600$  К призвело до зростання ГМО на 38% (у поперечній) та на 14% (у поздовжній геометрії) від значення ГМО для невідпаленого зразка. Подальше відпалювання зразка у температурному інтервалі  $600 < T_{\text{відп.}} \leq 900$  К майже не змінило величину його магнітоопору (рис. 3.6 та рис. 3.7).

При великих частках пермалою у сплаві (наприклад, при  $x_{\text{Pu}} = 0,74$  та  $x_{\text{Pu}} = 0,81$ ) гранули пермалою можуть дотикатися одна одної, утворюють звичайний

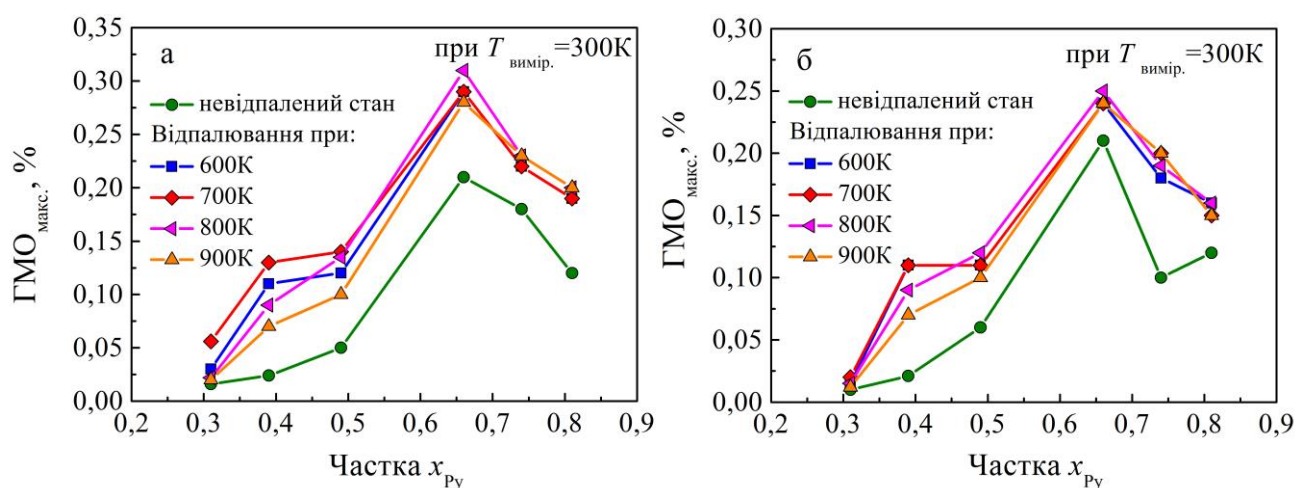


Рисунок 3.6 – Залежність величини ГМО зразків плівкових сплавів на основі Ru і Cu товщиною  $d = 25$  нм від їх складу у невідпаленому стані та після відпалювання при різних температурах. Вимірювання ГМО виконували у поперечній (а) та поздовжній (б) геометріях вимірювання у полі  $H_{\text{макс}} = 4,5$  кЕ при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К

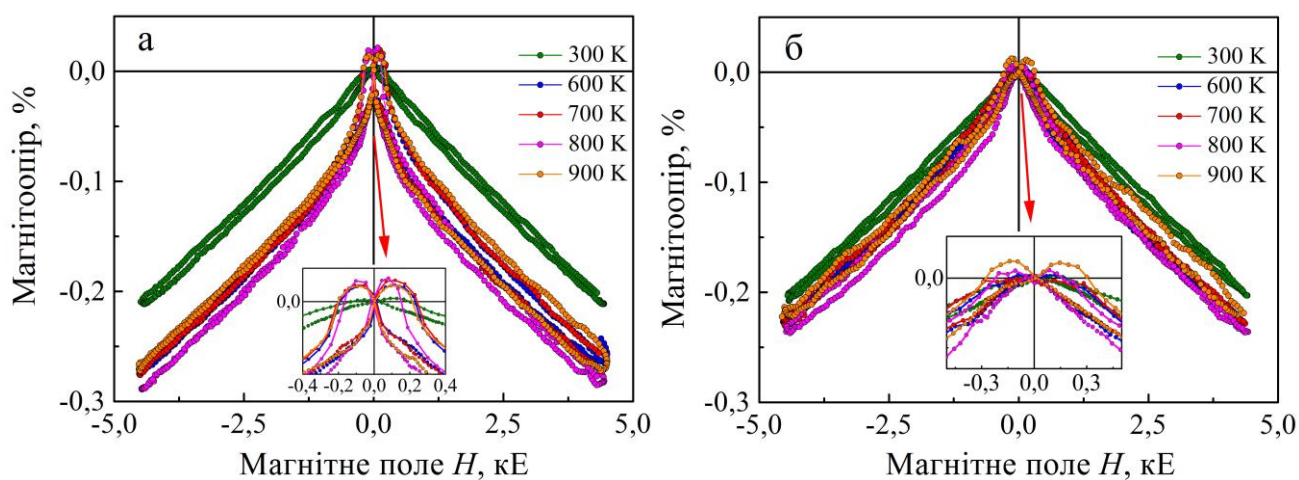


Рисунок 3.7 – Польові залежності магнітоопору, виміряні у поперечній (а) та поздовжній (б) геометріях для зразка  $\text{Ru}_{0,66}\text{Cu}_{0,34}$  у невідпаленому стані та після відпалювання при  $T_{\text{відп.}} = 600 - 900$  К. Дослідження виконані при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К.

Товщина зразка  $d = 25$  нм



омічний канал провідності. Тому у даному випадку спін - залежне розсіювання електронів провідності є малоефективним, а амплітуда ГМО відповідно має малі значення ( $\text{ГМО}_{\text{макс}} \approx 0,1 \%$  у для невідпаленого зразка з  $x_{\text{Pу}} = 0,81$ ).

Цікавою особливістю зразків плівкових сплавів на основі Ру та Си є те, що при зміні частки пермалою у сплаві у широкому діапазоні  $0,31 \leq x_{\text{Pу}} \leq 0,81$  як невідпалені так і відпалені при  $T_{\text{відп.}} \leq 900 \text{ K}$  зразки залишаються магнітоізотропними. Крім того, при зміні частки пермалою у сплаві у діапазоні  $0,49 \leq x_{\text{Pу}} \leq 0,81$  магнітоопір зразків залишається стабільним, незважаючи на їх термообробку. Завдяки термічній стабільності магнітоопору плівкові сплави на основі Ру та Си можуть бути перспективними при застосуванні їх як чутливих елементів сенсорів величини магнітного поля.

На рис. 3.8 та 3.9 приведені польові залежності магнітоопору зразків ( $d = 40$  нм) плівкових сплавів на основі Ру та Си у невідпаленому стані та після відпалювання при  $700 \text{ K}$  відповідно. Вимірювання були проведені у перпендикулярній та поздовжній геометріях вимірювання при  $T_{\text{вимір.}} = 300 \text{ K}$ . Результати досліджень магніторезистивних властивостей даних плівок товщиною  $40 \text{ нм}$  узгоджуються з результатами для зразків товщиною  $25 \text{ нм}$ .

Невідпалені зразки є магнітоізотропними у всьому досліджуваному діапазоні складів. Форма кривих магнітоопору (при вимірюваннях у паралельній геометрії) зі збільшенням частки пермалою у сплаві змінювалася від куполоподібної (при  $0,21 \leq x_{\text{Pу}} \leq 0,33$ ) до дзвоноподібної (при  $x_{\text{Pу}} \geq 0,42$ ) (рис. 3.8). Після відпалювання зразків при температурі  $700 \text{ K}$  криві магнітоопору для всіх досліджуваних плівок характеризувалися дзвоноподібною формою (рис. 3.9). Відпалювання плівкових зразків при температурах  $600 \leq T_{\text{відп.}} \leq 900 \text{ K}$  практично не повпливало на величину гігантського магнітоопору плівкових сплавів та форму концентраційної кривої (рис. 3.10).

Виміряні у поздовжній геометрії при криогенних температурах польові залежності магнітоопору (рис. 3.11) невідпаленого зразка плівкового сплаву  $\text{Ru}_{0,50}\text{Cu}_{0,50}$  товщиною  $d = 40 \text{ нм}$  показали, що ГМО у магнітному полі  $H_{\text{макс}} = 90 \text{ кЕ}$

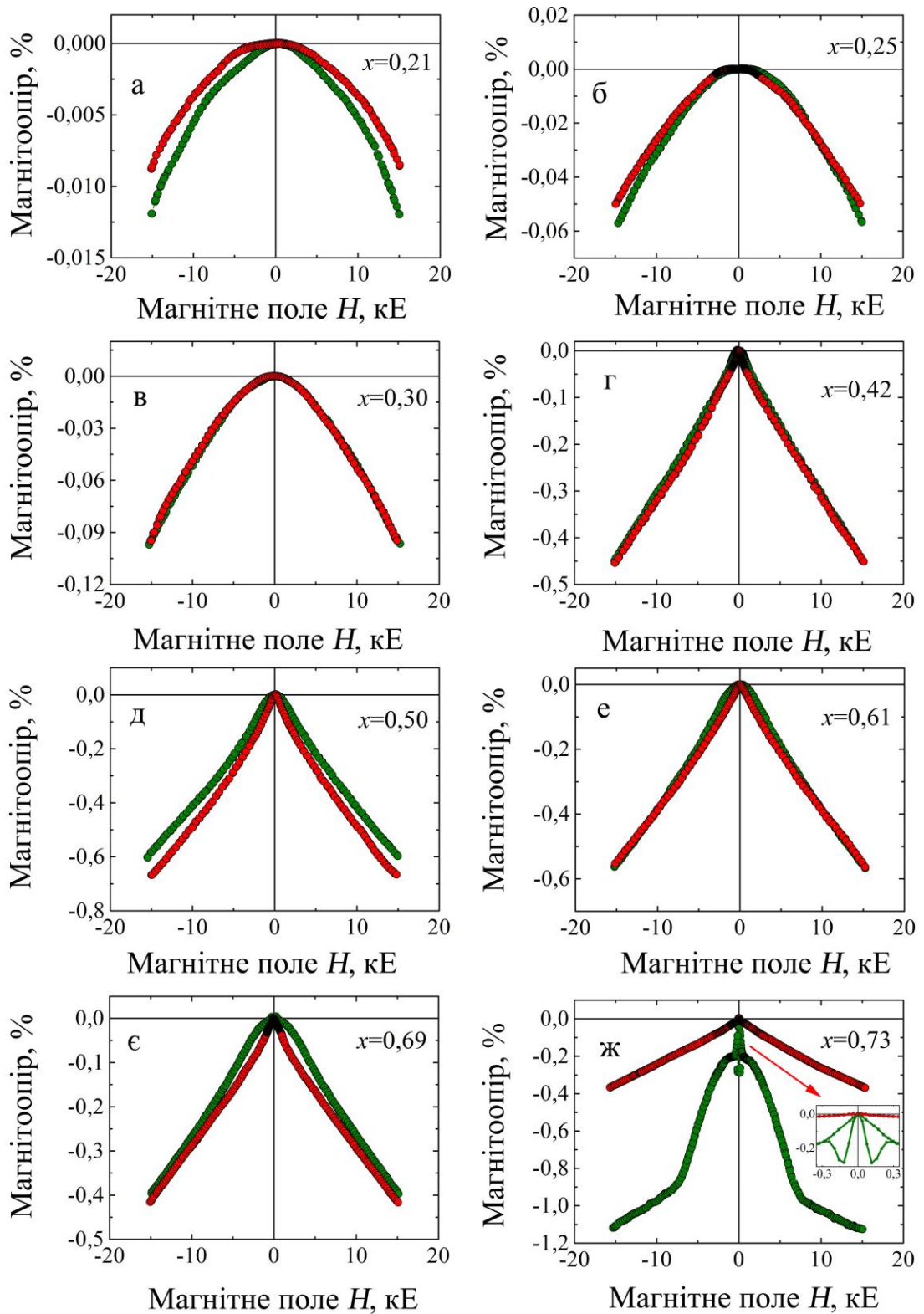


Рисунок 3.8 – Польові залежності магнітоопору невідпалених зразків плівкових сплавів на основі Рu та Сu, виміряні у перпендикулярній (●) та поздовжній (●) геометріях вимірювання при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К. Товщина зразків  $d = 40$  нм

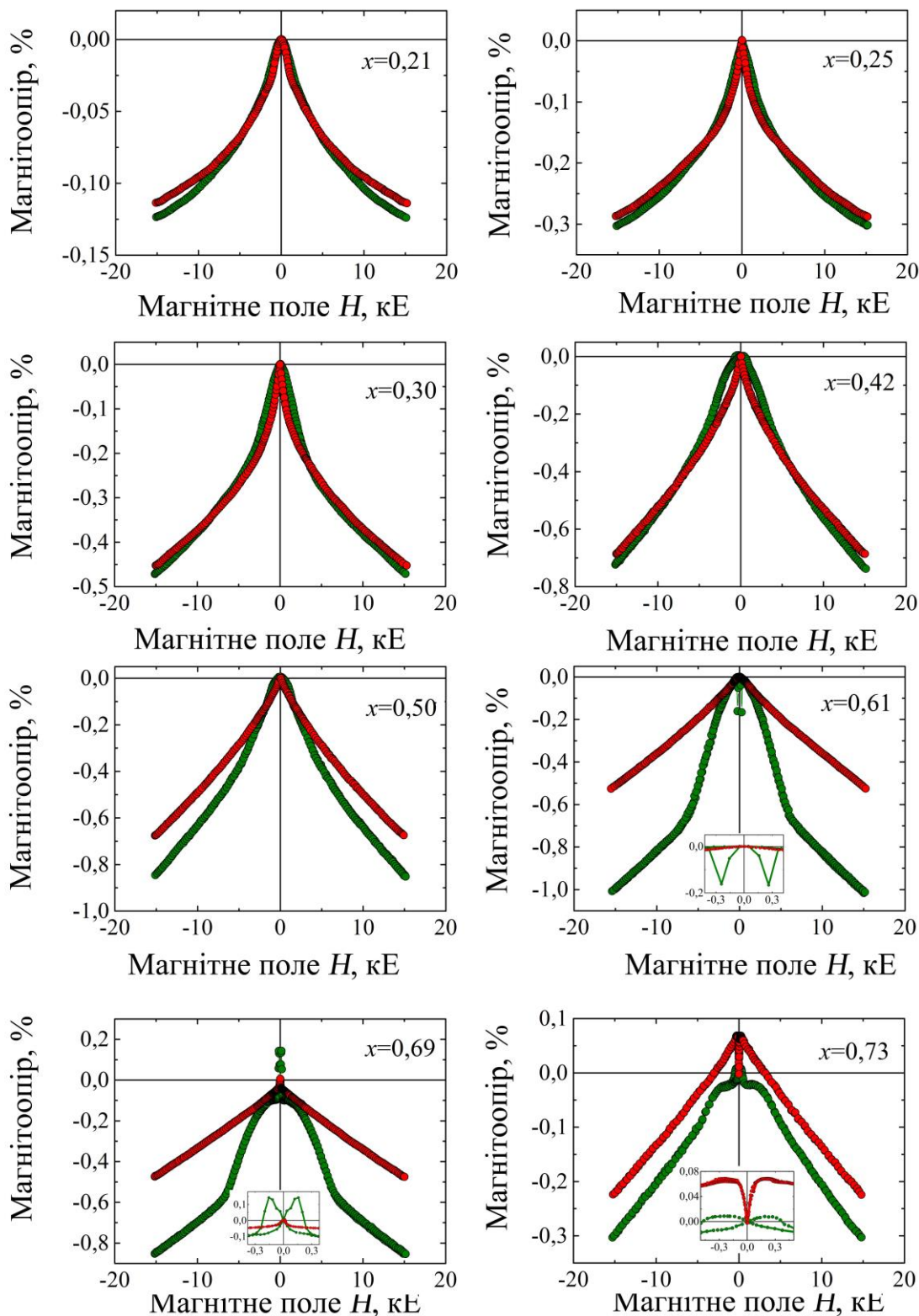


Рисунок 3.9 – Польові залежності магнітоопору відпалених при  $T_{\text{відп.}} = 700$  К зразків плівкових сплавів на основі Ru та Cu, виміряні у перпендикулярній (●) та поздовжній (●) геометріях вимірювання при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К. Товщина зразків  $d = 40$  нм

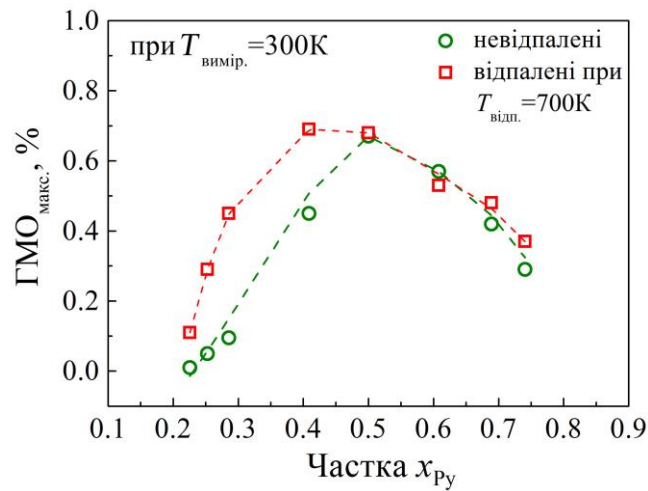


Рисунок 3.10 – Залежність величини ГМО плівкових сплавів на основі Ru і Cu товщиною  $d = 40$  нм від їх складу у невідпаленому стані та після відпалювання при  $T_{\text{відп.}} = 700$  К. Вимірювання ГМО здійснювали у поздовжній геометрії вимірювання у полі  $H_{\text{макс}} = 15$  кЕ при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К

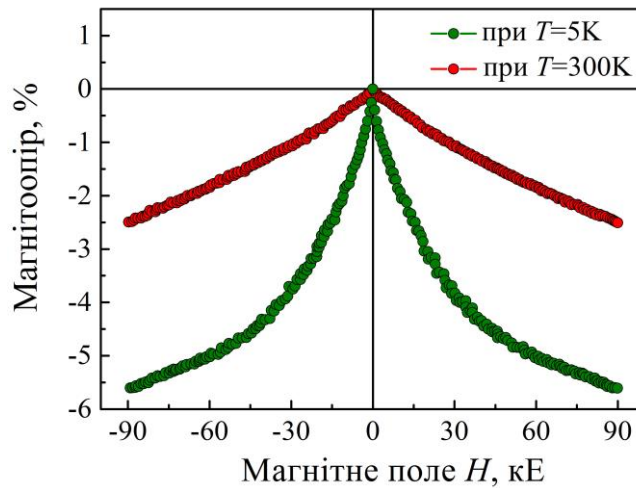


Рисунок 3.11 – Польові залежності магнітоопору невідпаленого зразка плівкового сплаву на основі пермалюю та міді з часткою пермалюю  $x = 0,50$ . Вимірювання виконані у поздовжній геометрії при  $T_{\text{вимір.}} = 5$  та 300 К. Товщина плівки  $d = 40$  нм

при  $T_{\text{вимір.}} = 5 \text{ К}$  зріс у 2,3 рази, порівняно з ГМО при кімнатній температурі. Такий результат є характерним для гранульованої структури, що складається переважно із суперпарамагнітних гранул. Даний результат підтверджує результати досліджень структурного стану, отримані методом просвічуючої електронної мікроскопії.

Узагальнюючи результати дослідження магніторезистивних властивостей плівкової системи на основі  $\text{Ru}$  і  $\text{Cu}$  слід відзначити, що максимальний ГМО при дослідженні зразків різного складу та різної товщини при вимірюваннях у поздовжній геометрії спостерігався у плівках  $\text{Ru}_{0.66}\text{Cu}_{0.34}$  (ГМО = 0,25 %) при товщині зразка  $d = 25 \text{ нм}$  і у плівках  $\text{Ru}_{0.50}\text{Cu}_{0.50}$  (ГМО = 0,68 %) при товщині зразка  $d = 40 \text{ нм}$  (рис. 3.12).

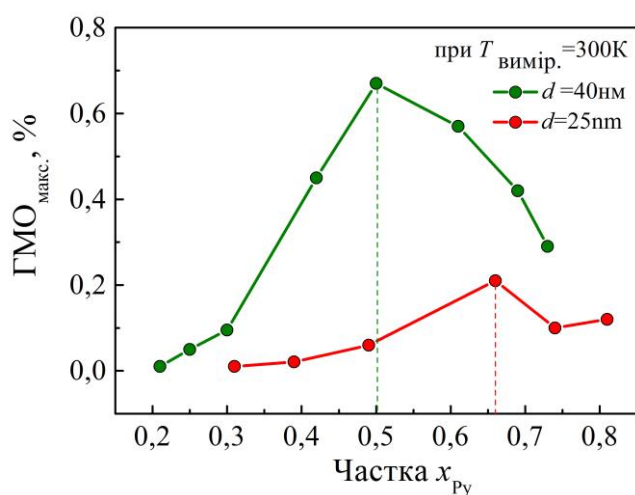


Рисунок 3.12 – Залежність величини ГМО невідпалених зразків плівкових сплавів на основі  $\text{Ru}$  і  $\text{Cu}$  товщиною 25 та 40 нм від їх складу. Вимірювання ГМО здійснювали у поздовжній геометрії вимірювання у полі  $H_{\text{макс}} = 4,5 \text{ кЕ}$  для зразків товщиною  $d = 25 \text{ нм}$  та  $H_{\text{макс}} = 15 \text{ кЕ}$  для зразків  $d = 40 \text{ нм}$  при  $T_{\text{вимір.}} = 300 \text{ К}$

Завдяки термічній стабільності структурно-фазового стану та магнітотранспортних властивостей, незважаючи на незначні величини ГМО, плівкові сплави на основі пермалою та міді можуть бути перспективними при застосуванні їх як термічностабільних чутливих елементів сенсорів величини магнітного поля.

## 3.2. Магнітні параметри багатокомпонентних плівкових сплавів.

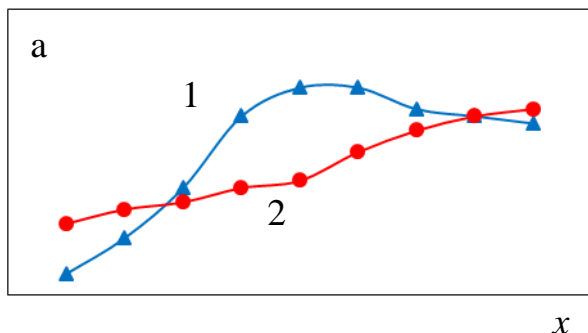
### 3.2.1. Магнітні параметри трикомпонентних плівкових сплавів Fe-Co-Cu

Як відомо коерцитивна сила визначається компонентою, зумовленою закріпленням доменної стінки структурними дефектами. Структурними дефектами полікристалічних плівок є межі між зернами, дисперсія осей кристалографічної анізотропії, шорсткість поверхні.

Криві залежності  $B_C = f(x)$  та  $B_S = f(x)$  для дво- та трикомпонентних плівкових сплавів наведені на рис. 3. Для двокомпонентних сплавів залежність  $B_C = f(x)$  носить не монотонний характер (рис 3.13а, крива 1). Зі збільшенням концентрації Fe до 60 ат.% значення коерцитивної сили збільшуються від 8 до 30 мТл. Зростання величини  $B_C$  ймовірно обумовлене збільшенням розміру зерна при збільшенні вмісту заліза, що, в свою чергу викликає різну магнітну взаємодію між кристалітами. Також зростання величини  $B_C$  може бути обумовлено і перерозподілом точкових дефектів по міжзернових межах, що призводить до збільшення ролі об'ємних механізмів закріплення доменних стінок. При подальшому збільшенні вмісту Fe спостерігається зменшення коерцитивної сили до 24 мТл. Утворення максимуму на залежності  $B_C = f(x)$ , на нашу думку, обумовлено фазовим переходом від ОЦК – Fe-Co до ОЦК – Fe-Co + ГЦК – Co [9-10].

На залежності  $B_S = f(x)$  для двокомпонентних плівкових сплавів зрадааний максимум не спостерігається, а фіксується лише згин залежності (рис. 3б, крива 1). Таку відмінність можна пояснити меншою чутливістю величини поля насичення до структурно-фазового стану зразків. На відміну від двокомпонентних плівкових сплавів для трикомпонентних криві залежності  $B_C = f(x)$  та  $B_S = f(x)$  носять монотонний характер (рис 3.13, криві 2). Причому залежність  $B_C = f(x)$  (рис. 3.13а, крива 2) є майже лінійною. Такі відмінності можуть бути обумовлені формуванням гранульованого стану при концентрації заліза більше 60 ат.%. Магнітний стан гранульованого сплаву приводить до лінійного збільшення величини  $B_C$ . А також, як відмічалось вище до реалізації спін-залежного розсіювання електронів провідності на магнітних гранулах.

$B_C$ , mT



$B_S$ , mT

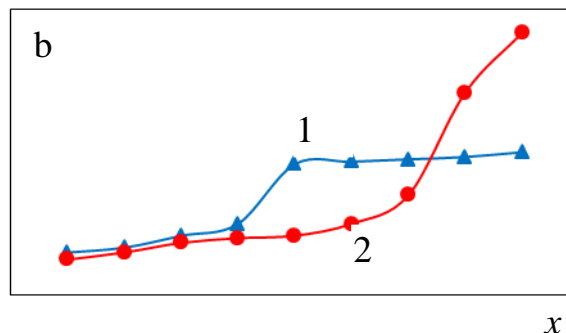


Рисунок 3.13 – Залежності значень коерцитивної сили  $B_C$  та поля насичення  $B_S$  від вмісту Fe  $x$  для плівкових сплавів  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}/\text{П}$  (криві 1) та  $(\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_{0,5}\text{Cu}_{0,5}/\text{П}$  (криві 2) товщиною  $d=30$  нм.

При появі ізотропного характеру польових залежностей магнітоопору величина  $B_S$  (рис. 3.13б, крива 2) різко зростає. Причиною зростання  $B_S$  є необхідність паралельної орієнтації магнітних моментів феромагнітних гранул. Отже, згин на залежності  $H_S=f(x)$  пов'язаний із переходом анізотропного магнітоопору в гігантський МО.

### 3.2.2. Магнітні властивості плівкових сплавів на основі Ru і Cu

Результати дослідження магнітних властивостей зразків плівкових сплавів на основі пермалою та міді при різній частці магнітної компоненти  $x_{\text{Ru}}$ , представлені на рис. 3.14 та 3.15. Польові залежності намагніченості були отримані методом вібраційної магнітометрії у двох геометріях вимірювання при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К. З рис.3.14 видно, що невідпалені зразки, складом до  $x_{\text{Ru}} \leq 0,42$  характеризуються магнітною ізотропією. Тобто, польові криві нормованої намагніченості, виміряні в обох геометріях, майже співпадають. Починаючи з  $x_{\text{Ru}} \geq 0,50$  з'являється магнітна анізотропія. Незважаючи на це, величина поля насичення  $H_s$  у паралельній геометрії вимірювання – незначна ( $H_s \leq 1$  кЕ). Зі збільшенням частки пермалою у сплаві – поле насичення зменшується. Так, при  $x_{\text{Ru}} = 0,50$  польові криві, виміряні у

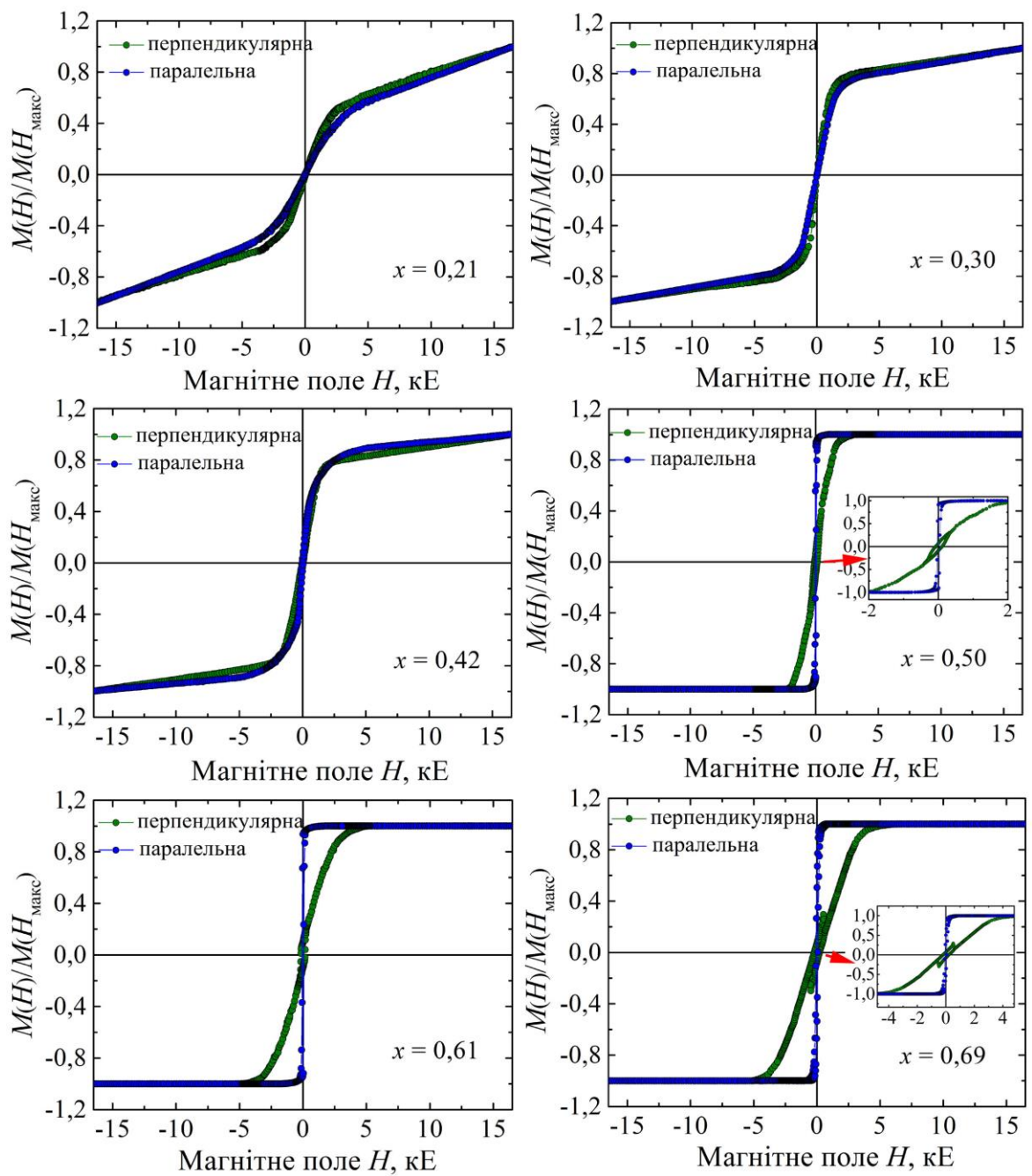


Рисунок 3.14 – Польові залежності нормованої намагніченості для невідпалених зразків плівкових сплавів на основі Ru і Cu різного складу  $0,21 \leq x_{\text{Ru}} \leq 0,69$  товщиною  $d = 40$  нм, виміряні у перпендикулярній та паралельній геометріях вимірювання при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К



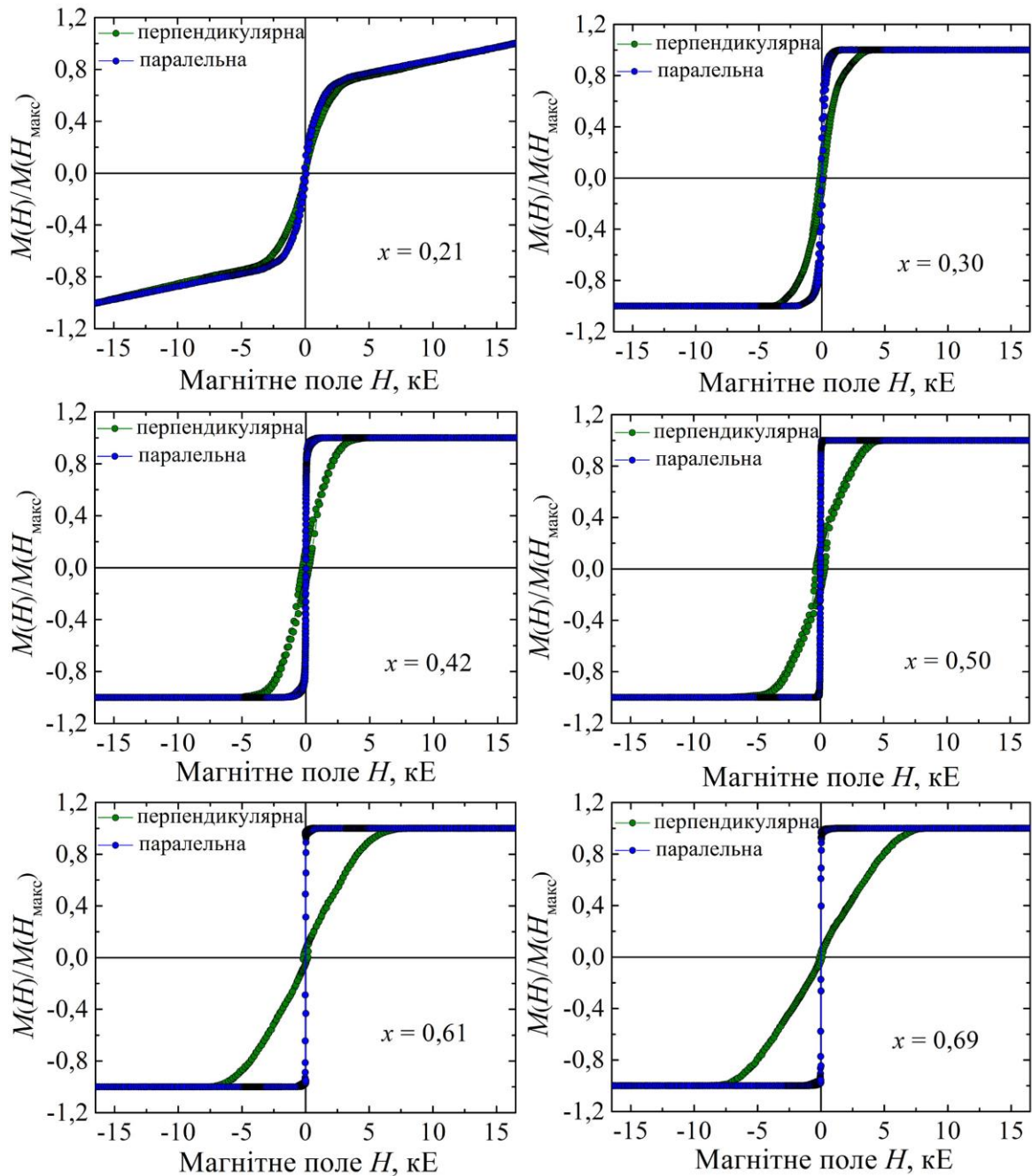


Рисунок 3.15 – Польові залежності нормованої намагніченості для відпалених при  $T_{\text{відп.}} = 700$  К зразків плівкових сплавів на основі Ru і Cu різного складу  $0,21 \leq x_{\text{Ru}} \leq 0,69$  товщиною  $d = 40$  нм, виміряні у перпендикулярній та паралельній геометріях вимірювання при  $T_{\text{вимір.}} = 300$  К

паралельній геометрії, насичуються у полі  $H_s = 0,95$  кЕ, при  $x_{\text{Pу}} = 0,61$  – у полі  $H_s = 0,9$  кЕ, а при  $x_{\text{Pу}} = 0,61$  – у полі  $H_s = 0,85$  кЕ. Для перпендикулярної геометрії вимірювання зі збільшенням частки пермалою у сплаві – поле насичення зростає, однак його величина менше, ніж у гранульованих системах на основі Co і Ag або Co і Cu. При  $x_{\text{Pу}} = 0,50$  поле насичення, виміряне у перпендикулярній геометрії, відповідає  $H_s = 2,8$  кЕ, при  $x_{\text{Pу}} = 0,61$  –  $H_s = 5$  кЕ, при  $x_{\text{Pу}} = 0,69$  –  $H_s = 5,8$  кЕ.

На рис. 3.14 представлені польові залежності нормованої намагніченості для відпалених при 700 К зразків плівкових сплавів на основі Pу і Cu різного складу. Відпалені зразки характеризуються магнітною ізотропією лише при  $x_{\text{Pу}} = 0,21$ , а при  $x_{\text{Pу}} = 0,30$  з'явилася магнітна анізотропія. При цьому, поля насичення намагніченості зразка у паралельній геометрії майже не змінилися порівняно з намагніченістю невідпалених зразків. Так, наприклад, при  $x_{\text{Pу}} = 0,61$  поле насичення становило  $H_s = 0,85$  кЕ, що співпадає з полем насичення невідпаленого зразка при  $x_{\text{Pу}} = 0,61$ . При вимірюваннях у перпендикулярній геометрії поля насичення збільшилися, але не суттєво. При  $x_{\text{Pу}} = 0,61$  поле насичення відпаленого зразка у перпендикулярній геометрії становило  $H_s = 7,6$  кЕ.

### **3.2.3. Магнітоопір та магнітні параметри плівкових сплавів FeNiCoCu**

На рис. 3.16 як ілюстрація наведена польова залежністю магнітоопору для термостабілізованої плівки багатокомпонентного сплаву FeNiCoCu/П ( $d = 60$  нм). У цьому випадку зразок був спочатку намагнічений до насичення в магнітному полі, спрямованому уздовж осі легкого намагнічування. При зменшенні індукції магнітного поля від поля насичення до нуля хід польової залежності магнітоопору в значній мірі повторює хід даної залежності в магнітному полі більшому за поле насичення. При зміні напрямку магнітного поля на протилежний, електричний опір зразка зменшується. Потім, коли індукція зовнішнього магнітного поля сягає значення близько 2 мТл, на краях зразка формуються домени клиноподібної форми (зародки зворотньої намагніченості). При цьому магнітоопір виміряний у поздовжній геометрії досягає свого мінімуму. При подальшому збільшенні

магнітного поля електричний опір плівкового феромагнітного сплаву при цьому починає збільшуватися. Подальше навіть незначне збільшення індукції зовнішнього магнітного поля приводить до різкого зростання електроопору зразка, а польова залежність магнітоопору виходить на насичення. Слід зазначити, що процес перемагнічування плівки протікає у вигляді декількох стрибкоподібних зміщень доменних стінок у вузькому інтервалі магнітних полів. Слід відмітити, що подібна картина спостерігалася і для одношарових плівок феромагнітних металів та сплавів.

Попередні дослідження вказують на те, що змінюючи концентрацію атомів магнітної компоненти, можна отримати ВЕС плівки із відносно великими коерцитивною силою і полем насичення, а також у широкому інтервалі

Як підсумок слід зазначити, що наведені результати мають наукову цінність як із фундаментальної, так і прикладної точки зору для таких галузей знань як металофізика і матеріалознавство та можуть бути використані як у вітчизняній, так і світовій науці. У даному проекті реалізована достатньо проста і ефективна концепція формування багатокомпонентних сплавів нанорозмірних товщин, а дослідження вище зазначених властивостей та характеристик проводиться на обладнанні, яке використовується у провідних наукових центрах світу.

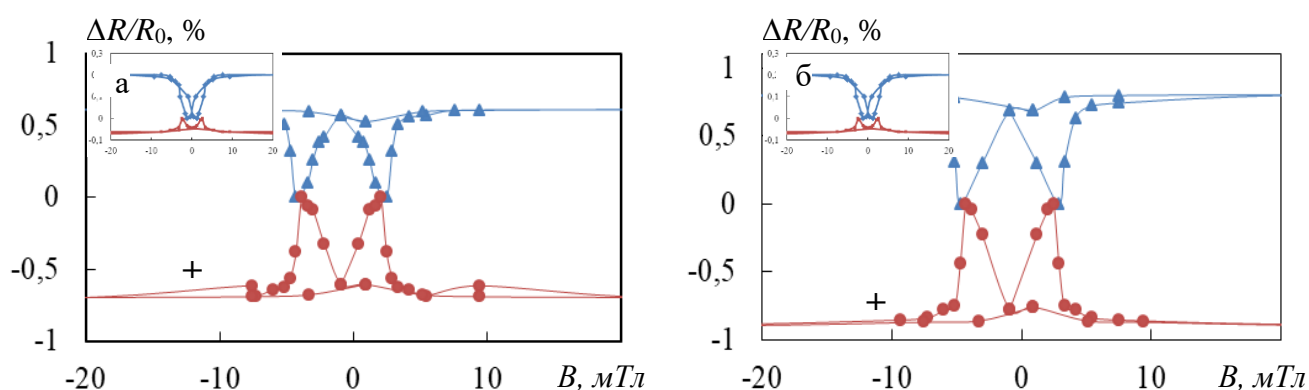


Рисунок 3.16 – Залежність поздовжнього (||) та поперечного (+) МО від індукції магнітного поля для плівок сплаву FeNiCoCu/П ( $d = 60$  нм; а – температура вимірювання 300 К; б – температура вимірювання 120 К)

### 3.3. Магніторезистивні та магнітні властивості високоентропійних плівкових сплавів AlCrFeCoNiCu

Розглянемо результати дослідження магніторезистивного ефекту в невідпалених та відпалених при температурі 700 К плівках багатокomпонентного сплаву AlCrFeCoNiCu/П товщинами  $d = 20-100$  нм.

Методом EDX було визначено концентрацію всіх компонентів ВЕС (табл.3.1). Також були отримані карти розподілу елементів Al, Cr, Fe, Co, Ni, та Cu від високоентропійного еквіатомного плівкового сплаву AlCrFeCoNiCu в об'ємі плівки. Похибка визначення концентрації компонент не перевищує 1 ат.%.

Таблиця 3.1 – Елементний склад (ат.%,  $n = 6$ ) високоентропійних плівкових сплавів отриманий за допомогою ЕДС аналізу

Сплав	Al	Cr	Fe	Co	Ni	Cu
AlCrFeCoNiCu	11,03	12,52	11,07	22,93	29,47	12,97

Для невідпалених зразків у зовнішньому магнітному полі до 0,5 Тл за кімнатної температури магніторезистивний ефект не фіксувався. Причиною цього може бути високо дефектна кристалічна структура та присутність парамагнітної фази, які призводять до відсутності спонтанної намагніченості і як наслідок магнітоопору.

З літературних джерел відомо (див., наприклад, [49-56]), що магнітні та магніторезистивні властивості одно- та багат шарових плівок суттєво залежать від фазового та елементного складу, розмірів кристалітів у шарах та їх кристалографічної орієнтації. Тому формування високоентропійних плівкових сплавів із потрібними магніторезистивними та магнітними характеристиками може бути реалізовано за рахунок задання технологічних параметрів (швидкість конденсації зразків, температура підкладки, а також умови термообробки зразків). У наших експериментах усі сконденсовані плівки відпалювались у вакуумі при

температурі 700 К. Тривалість відпалювання за кожної температури складала 15 хв. Процес відпалювання приводить до появи анізотропного магнітоопору. На рис. 3.17, у якості ілюстрації, наведені польові залежності анізотропного магнітоопору для зразків різної товщини, які пройшли термостабілізацію. Після аналізу отриманих залежностей, можна відзначити наступне. Отримані польові залежності магнітоопору мають гістерезисний характер. Це обумовлено формуванням магнітних кластерів та появою ГЦК-фази в процесі термообробки. Магнітні метали Fe, Co та Ni, які формують магнітну ГЦК-фазу в високоентропійних сплавах характеризуються анізотропним магнітоопором. Величина магнітоопору при цьому складає 0,02 – 2% у залежності від вмісту компонент, товщини зразків та температури вимірювання.

Як уже зазначалось магнітні властивості багатокомпонентних сплавів залежать від структурного, фазового стану та елементного складу, які в свою чергу визначаються, в тому числі, і умовами термообробки. Також термічна обробка є ефективним засобом впливу на мікроструктуру [58-71]. Слід відмітити, що стабільні магнітні характеристики ВЕС фіксувалися лише після термообробки. На рис. 3.18 в якості ілюстрації наведені польові залежності намагніченості для ВЕС AlCrFeCoNiCu/П отримані при температурах 2 і 300 К. Значення коерцитивної сили ( $B_c$ ), залишкової намагніченості ( $M_r$ ) та намагніченості насичення ( $M_s$ ) при паралельній та перпендикулярній геометрії вимірювання наведені у таблиці 3.2. Значення параметрів суттєво залежать від температури вимірювання. При зниженні температури вимірювання від кімнатної до 2 К спостерігається зміна форми петель магнітного гістерезису та збільшення значень магнітних параметрів. Так коерцитивна сила при кімнатній температурі не перевищувала 10 мТл, а при 2 К збільшувалася до 70 – 80 мТл при паралельній геометрії вимірювання і до 90 -100 мТл при перпендикулярній. Слід відмітити, що коерцитивна сила визначається компонентою, зумовленою закріпленням доменної стінки структурними дефектами. Структурними дефектами полікристалічних плівок є межі між зернами, дисперсія осей кристалографічної анізотропії, шорсткість поверхні.

Таблиця 3.2 – Магнітні параметри високоентропійних плівкових сплавів AlCrFeCoNiCu товщиною 60 нм

	2 К			300 К		
	$B_C$ , мТл	$M_r \cdot 10^6$ , А/м	$M_S \cdot 10^6$ , А/м	$B_C$ , мТл	$M_r \cdot 10^6$ , А/м	$M_S \cdot 10^6$ , А/м
Паралельна геометрія	76,90	0,32	1,08	2,60	0,04	1,32
Перпендикулярна геометрія	91,20	0,30	1,08	5,60	0,05	1,32

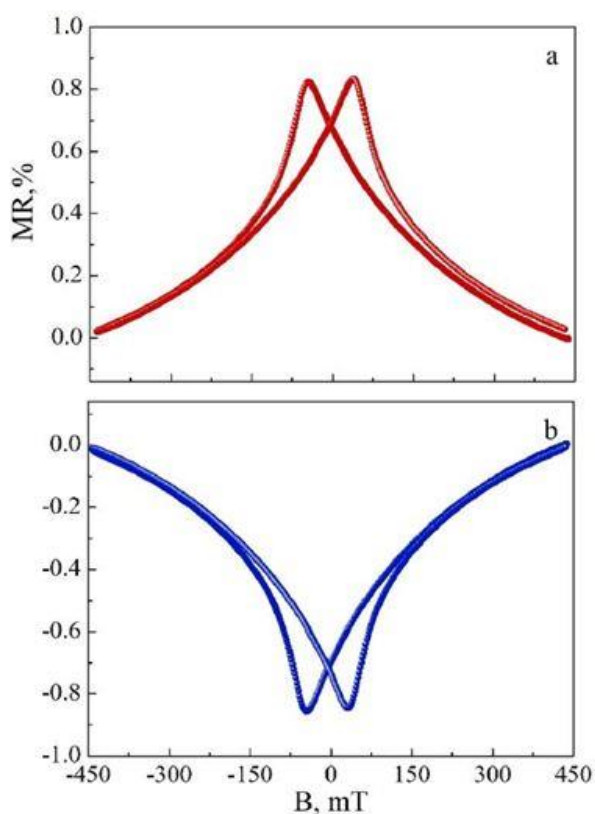


Рисунок 3.17 – Польові залежності поздовжнього (а) та поперечного (б) магнітоопору відпаленого в атмосфері Ag/H<sub>2</sub> при температурі 700 К високоентропійного плівкового сплаву AlCrFeCoNiCu/П товщиною 60 нм. Температура вимірювання 2 К.

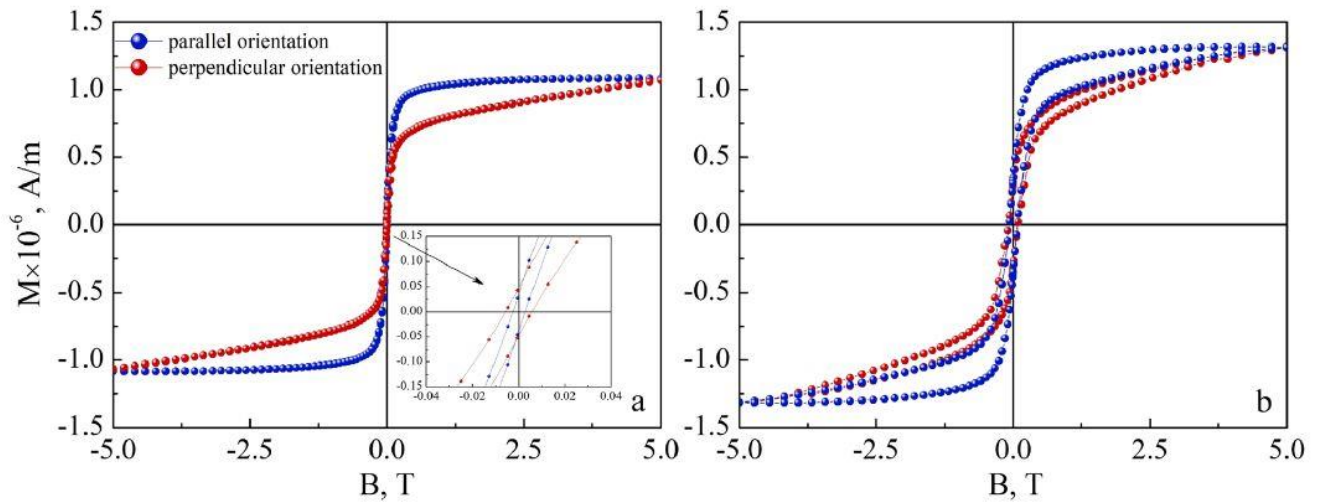


Рисунок 3.18 – Польові залежності намагніченості для високоентропійного плівкового сплаву AlCrFeCoNiCu/П товщиною 60 нм отримані при температурах 2 і 300 К.

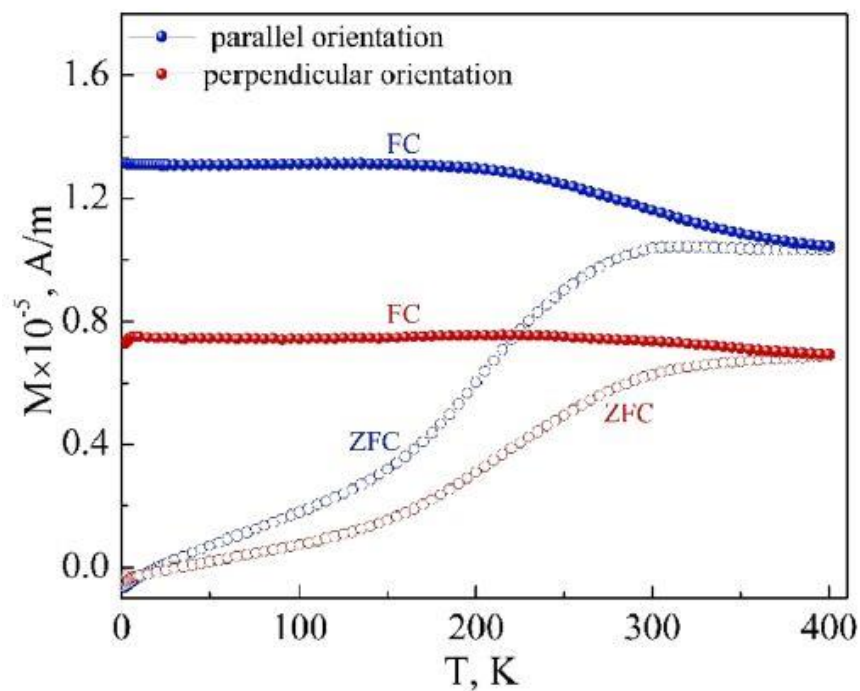


Рисунок 3.19 – Температурні залежність намагніченості (режим ZFC-FC) для високоентропійного плівкового сплаву AlCrFeCoNiCu/П товщиною 60 нм

Малі значення коерцитивної сили при кімнатній температурі ВЕС  $\text{AlCrFeCoNiCu}$  дають можливість віднести його до класу магнітом'яких плівкових матеріалів. Ці результати добре узгоджуються з результатами робіт [57] в яких досліджувалися подібні ВЕСи.

На рис. 3.19 в якості ілюстрації наведені температурні залежність намагніченості (режим ZFC-FC) для тонких плівок  $\text{AlCrFeCoNiCu}$ . Отримані температурні залежність намагніченості (режим ZFC-FC) для тонких плівок  $\text{AlCrFeCoNiCu}$  не вказують на прямі докази магнітного переходу від феромагнітного до суперпарамагнітного стану.



## ВИСНОВКИ

1. Установлено, що польові залежності ізотропного магнітоопору зразків на основі Fe, Co, Ni та Cu з часткою магнітних компонент у сплаві 0,3 – 0,5 мали лінійний характер, не демонстрували гістерезису та не насичувалися у полях до 0,5 Тл. Результати дослідження структурного стану, виконані методом ПЕМ та досліджень магнітних властивостей методом вібраційної магнітометрії показують, що структурний стан таких плівок відповідає ансамблю не взаємодіючих між собою суперпарамагнітних гранул.

2. Показано, що при збільшенні частки магнітних компонент у сплавах до  $x = 0,6 - 0,7$  величина ізотропного магнітоопору збільшувалась у 5 – 10 разів у залежності від товщини та елементного складу. Відсутність насичення на польових залежностях магнітоопору свідчить про те, що структурний стан зразків відповідає такому, де суперпарамагнітні гранули розміщені у немагнітній матриці, а сили взаємодії між гранулами відсутні або не значні. При великих частках магнітних компонент у сплаві ( $x = 0,75 - 0,8$ ) гранули пермалою можуть дотикатися одна одної, утворюють звичайний омичний канал провідності, і як наслідок, спін - залежне розсіювання електронів провідності є малоефективним, а амплітуда ізотропного магнітоопору відповідно має малі значення (0,1 - 0,15%).

3. Показано, що польові залежності нормованої намагніченості, виміряні в обох геометріях, майже співпадають, при частці магнітних компонент у сплавах  $x \geq 0,50$  з'являється магнітна анізотропія. Зі збільшенням частки магнітних компонент у сплавах на основі пермалою та міді поле насичення зменшується (при  $x = 0,50$  польові криві, виміряні у паралельній геометрії, насичуються у полі  $B_s = 0,01$  Тл, при  $x = 0,6$  – у полі  $B_s = 0,009$  Тл, а при  $x = 0,65$  – у полі  $B_s = 0,0085$  Тл. Для перпендикулярної геометрії вимірювання зі збільшенням частки пермалою у сплаві – поле насичення зростає.

4. Показано, що для високоентропійних плівкових сплавів на основі Al, Cr, Fe, Co, Ni та Cu, зокрема плівок еквіатомного складу, фіксується лише анізотропний характер магнітоопору. При цьому концентраційні залежності

магнітоопору мають монотонний характер, при збільшенні вмісту немагнітних металів величина магнітоопору зменшується. Розмірні залежності анізотропного магнітоопору також мають монотонний характер. При збільшенні товщини плівкових сплавів спостерігається незначне зростання величини магнітоопору.

5. Встановлено закономірності в розмірних та концентраційних залежностях магнітних параметрів (коерцитивна сила, залишкове намагнічення та намагнічення насичення) для багатокомпонентних плівкових сплавів AlCrFeCoNiCu із різною товщиною та концентрацією компонент. Показано, що усі параметри визначаються, в першу чергу, концентрацією компонент та температурою при якій проводилися магнітні вимірювання. Зі зниженням температури вимірювання від кімнатної температури до 5 К, спостерігається незначна зміна форми петель магнітного гістерезису та збільшення всіх магнітних параметрів. Величина коерцитивної сили не перевищує 6 мТл при температурі 300 К і значно зростає при охолодженні до 5 К, особливо при паралельній геометрії вимірювання. Низьке значення коерцитивності при 300 К дають можливість стверджувати, що досліджувані високоентропійні сплави належить до класу магнітом'яких матеріалів.

6. Отримані температурні залежність намагніченості в режимі ZFC-FC для тонких плівок AlCrFeCoNiCu не вказують на прямі докази магнітного переходу від феромагнітного до суперпарамагнітного стану.

## СПИСОК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАННЯ

1. A. Larsen, C. Bazioti, B. Belle, A. Poulia, P. Carvalho, S. Diplas, A. Azar, A. E. Gunnæs, P. Mikheenko Identifying Magnetic Phases in Additively Manufactured High-Entropy Alloy  $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$  // Proceedings of IEEE International Conference on “Nanomaterials: Applications & Properties” (NAP-2021). – 2021. – P. NMM03-1.
2. E. P. George, D. Raabe, and R. O. Ritchie High- entropy alloys // Nature Reviews Materials. 2020, vol. 4, pp. 515-534.
3. M. H. Tsai, and J. W. Yeh High-entropy alloys: a critical review // Materials Research Letters. 2020, vol. 2, pp. 107-123.
4. L. Huang, Y. Sun, A. Amar, C. Wu, X. Liu, G. Le, X. Wang, J. Wu, K. Li, C. Jiang, and J. Li Microstructure evolution and mechanical properties of  $\text{Al}_x\text{CoCrFeNi}$  high-entropy alloys by laser melting deposition // Vacuum. 2021, vol. 183, 109875.
5. J. Zhang, H. Qiu, H. Zhu, and Z. Xie. Effect of Al additions on the microstructures and tensile properties of  $\text{Al}_x\text{CoCr}_3\text{Fe}_5\text{Ni}$  high entropy alloys // Materials Characterization. 2021, vol. 175, 111091.
6. A. Poulia, A. Azar, P. Svec, C. Bazioti, B. Belle, A. E. Gunnæs, S. Diplas, and P. Mikheenko Nanoscale Magnetic Properties of Additively Manufactured  $\text{FeCoNiAl}_x\text{Mn}_x$  High-Entropy Alloys. 2020 IEEE 10th International Conference Nanomaterials: Applications & Properties (NAP), pp. 01NMM02-1-01NMM02-5.
7. R. K. Mishra and R. Shahi. A systematic approach for enhancing magnetic properties of  $\text{CoCrFeNiTi}$ -based high entropy alloys via stoichiometric variation and annealing // Journal of Alloys and Compounds, 2020, vol. 821, 153534.
8. C. L. P. Pavithra, R. K. S. .K. Janardhana, K. M. Reddy, C. Murapaka, J. Joardar, B. V. Sarada, R. R. Tamboli, Y. Hu, Y. Zhang, X. Wang, and S. R. Dey An advancement in the synthesis of unique soft magnetic  $\text{CoCuFeNiZn}$

- high entropy alloy thin films // *Scientific Reports*, 2021, vol. 11, 8836.
9. J.H. Park, Y.K. Hong, S. Bae, J.J. Lee, J. Jalli, G.S. Abo, N. Neveu, S.G. Kim, C.J. Choi, and J.G. Lee Saturation magnetization and crystalline anisotropy calculations for MnAl permanent magnet // *Journal of Applied Physics*, 2010, vol. 107, pp. 1-3.
  10. Z. Li, G. Bai, X. Liu, S. Bandaru, Z. Wu, X. Zhang, M. Yan, and H. Xu Tuning phase constitution and magnetic properties by composition in FeCoNiAlMn high-entropy alloys // *Journal of Alloys and Compounds*, 2020, vol. 845, 156204.
  11. D. Passeri, C. Dong, M. Reggente, L. Angeloni, M. Barteri, F.A. Scaramuzzo, F. De Angelis, F. Marinelli, F. Antonelli, F. Rinaldi, C. Marianecchi, M. Carafa, A. Sorbo, D. Sordi, I. WCE Arends, and M. Rossi Magnetic force microscopy. Quantitative issues in biomaterials // *Biomaterials*, 2014, vol. 4, e2950.
  12. G. Cordova, B.Y. Lee, and Z. Leonenko Magnetic Force Microscopy for Nanoparticle Characterization // *NanoWorld Journal*, 2016, vol 2, pp. 10-14.
  13. A. L. Campaña, N. Joudeh, H. Høyer, A. Røyne, D. Linke, and P. Mikheenko, "Probing Van Der Waals and Magnetic Forces in Bacteria with Magnetic Nanoparticles," 2020 IEEE 10th International Conference Nanomaterials: Applications & Properties (NAP), 2020, pp. 01NSSA03-1-01NSSA03-5
  14. B. Torre, G. Bertoni, D. Fragouli, A. Falqui, M. Salerno, A. Diaspro, R. Cingolani, and A. Athanassiou Magnetic, force microscopy and energy loss imaging of superparamagnetic iron oxide nanoparticles // *Scientific Reports*, 2011, vol.1, 202.
  15. Sarid D, *Scanning Force Microscopy* // Oxford University Press, New York, USA, 1994.
  16. Yeh J.-W., Chen S.-K., Lin S.-J., Gan J.-Y., Chin Ts.-Sh., Shun T.-Ts., Tsau Ch.-H., Chang Sh.-Y. Nanostructured High-Entropy Alloys with Multiple Principle Elements: Novel Alloy Design Concepts and Outcomes // *Advanced Engineering Materials*, 2004, 6 №8, 299-303.

17. Wang Y.P., Li B.Sh., Heng Zh.F. Solid Solution or Intermetallics in a High-Entropy Alloy // *Advanced Engineering Materials*, 2009, 11 № 8, 641-644.
18. Singh S., Wanderka N., Murty B.S., Glatzel U., Banhart J., Decomposition in multi-component AlCoCrCuFeNi high-entropy alloy // *Acta Materialia*, 2011, 59, 182-190.
19. Senkov O.N., Wilks G.B., Scott J.M., Miracle D.B. Mechanical Properties of Nb<sub>25</sub>Mo<sub>25</sub>Ta<sub>25</sub>W<sub>25</sub> and V<sub>20</sub>Nb<sub>20</sub>Mo<sub>20</sub>Ta<sub>20</sub>W<sub>20</sub> refractory high entropy alloys // *Intermetallics*, 2011, 11, 698-706.
20. Chou H.-P., Chang Y.-Sh., Chen S.-K., Yeh J.-W. Microstructure, thermophysical and electrical properties in Al<sub>x</sub>CoCrFeNi (0 ≤ x ≤ 2) high-entropy alloys // *Materials Science and Engineering B*, 2009, 163, 184-189.
21. Manzoni A., Daoud H., Volkl R., Glatzel U., Wanderka N. Phase separation in equiatomic AlCoCrFeNi high-entropy alloy // *Ultramicroscopy*, 2013, 132, 212-215.
22. Otto F., Yang Y., Bei H., George E.P. Relative effect of enthalpy and entropy on the phase stability of equiatomic high-entropy alloys // *Acta Materialia*, 2013, 61, 2628-2638.
23. Kuznetsov V.A., Shaysultanov D.G., Stepanov N.D., Salishchev G.A., Senkov O.N. Tensile properties of an AlCrCuFeNiCo high-entropy alloy in as-cast and wrought conditions // *Material Science and Engineering A*, 2012, 533, 107-118.
24. Kuznetsov V.A., Shaysultanov D.G., Stepanov N.D., Salishchev G.A., Senkov O.N. Superplasticity of AlCoCrCuFeNi High Entropy Alloy // *Material Science Forum*, 2013, 735, 146-151.
25. Yeh, J. W. Alloy design strategies and future trends in high-entropy alloys // *JOM*, 2013. – V. 65.
26. Murty B.S., Yeh J.W., Ranganathan S. *High-Entropy Alloys* / Butterworth-Heinemann (Elsevier), 2014, 218.
27. Новиков И.И., Золоторевский В.С., Портной В.К., Белов Н.А., Ливанов Д.В., Медведев С.В., Аксенов А.А., Евсеев Ю.В. *Металловедение. Учебник*.

- В 2 томах Т.И. Колл. авторов / Под общей редакцией В.С. Золоторевского – М.: Издательский Дом МИСиС, 2009. – 496с.
28. Gali A., George E.P., Tensile Properties of high- and medium-entropy alloys // *Intermetallics*, 2013, 39, 74-78.
  29. Cantor B., Chang I.T.H., Knight P., Vincent A.J.B. Microstructural development in equiatomic multicomponent alloys // *Materials Science and Engineering A*, 2004, 375–377, 213–218
  30. Senkov O.N., Scott J.M., Senkova S.V., Miracle D.B., Woodward C.F. Microstructure and room temperature mechanical properties of a high-entropy TaNbHfZrTi alloy // *Intermetallics*, 2011, 509, 6043-6048.
  31. Jiang L., Lu Y., Dong Y., Wang T., Cao Z., Li T. Annealing effects on the microstructure and properties of bulk high-entropy CoCrFeNiTi<sub>0.5</sub> alloy casting ingot // *Intermetallics*. 2014, 37-43.
  32. Shun T.-T., Chang L.-Y., Shiu M.-H. Microstructure and mechanical properties of multiprincipal component CoCrFeNiMo<sub>x</sub> alloys // *Materials Characterization*. 2012, 63-67.
  33. Senkov O.N., Miracle D.B. A topological model for metallic glass formation // *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2003, 317, 34-39.
  34. Takeuchi A. Chen N., Wada T., Yokoyama Y., Kato H., Inoue A., Yeh J.W. Pd<sub>20</sub>Pt<sub>20</sub>Cu<sub>20</sub>Ni<sub>20</sub>P<sub>20</sub> high-entropy alloy as a bulk metallic glass in the centimeter // *Intermetallics*, 2011, 19, 1546-1554.
  35. Tong C J, Chen Y L, Chen S K, et al. Microstructure characterization of Al<sub>x</sub>CoCrCuFeNi high-entropy alloy system with multiprincipal elements // *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2005, 36: 881–893.
  36. Senkov O.N., Senkova S.V., Woodward C., Miracle D.B. Low-density, refractory multi-principal element alloys of the Cr–Nb–Ti–V–Zr system: Microstructure and phase analysis // *Acta Materialia*, 2013, 61, 1545–1557.
  37. Mizutani, U. Hume-Rothery rules for structurally complex alloy phases // Taylor and Francis Group, Boca Raton. 2011.

38. Tung C.C., Yeh J.W., Shun T.T., Chen S.K., Huang Y.S., Cheng H.C., On the elemental effect of AlCoCrCuFeNi high-entropy alloy system // Mater. Lett. 2007, 61, 1–5.
39. Tong C.J., Chen M.R., Chen S.K., Yeh J.W., Shun T.T., Lin S.J., Chang S.Y. Mechanical Performance of the Al<sub>x</sub>CoCrCuFeNi High-Entropy Alloy System with Multiprincipal Elements // Metall. Trans. A, 2005, 36A, 1263–1271.
40. Qiu X.-W. Microstructure and properties of AlCrFeNiCoCu high entropy alloy prepared by powder metallurgy // Journal of Alloys and Compounds, 2013, 555, 246-249.
41. Ивченко М. В., Пушин В. Г., Укусников А. Н., Wanderka N., Особенности микроструктуры литых высокоэнтروпийных эквиатомных сплавов AlCrFeCoNiCu // Физика металлов и металловедение, 2013, том 114, № 6, с. 561–568.
42. А.И. Юркова, В. В. Чернявский, А. И. Кравченко Формирование структуры и фазового состава нанокристаллического сплава CuNiAlFeCr методом механического легирования //Металлофиз. новейшие технол., 2014, том. 36, № 4, сс. 477–490.
43. J.-W. Yeh, S. Y. Chang, Y. D. Hong and et al., J. Mater. Chem. Phys., 2007, Vol 103, 41.
44. L. Shultz, Philos. Mag. B, **61**: 453 (1990).
45. М.В. Ивченко, В.Г. Пушин, N. Wanderka Высокоэнтропийные эквиатомные сплавы AlCrFeCoNiCu: гипотезы и экспериментальные факты //Журнал технической физики, 2014, том 84, вып. 2, 57-69.
46. Singh S., Wanderka N., Murty B.S., Glatzel U., Banhart J. // Acta Mater. 2011, Vol. 59. P. 182–190.
47. Миронов В.Л. Основы сканирующей зондовой микроскопии / В.Л. Миронов – Нижний Новгород: Институт физики микроструктур, 2004. – 114 с.
48. An atomic-resolution atomic-force microscope implemented using an optical lever / S. Alexander, L. Hellemans, O. Marti [et al.] // J. Appl. Phys. – 1989. – V. 65, № 1. – P. 164 – 167.

49. Дифузійні процеси та інтерфейсне розсіювання електронів в багатошарових металевих плівках / І.М. Пазуха, С.І. Проценко, І.Ю. Проценко [та ін.] // Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка. – 2006. – № 9(93). – С. 7 – 35.
50. Низкотемпературная взаимная диффузия в тонкопленочной системе Cu-Ni / М.В. Белоус, С. М. Волошко, А.Д. Красюк [и др.] // Металлофизика. – 1986. – Т. 8, № 5. – С. 54 – 60.
51. Свойства элементов. Справочник / Под ред. М.Е. Дрица, Металлургия, М. (1985). 672 с.
52. Диаграммы состояния металлических систем. В. XXXV. Приложение к сводному тому и выпуску «Металловедение и термическая обработка». М. (1991). С.113.
53. С. И. Проценко, М. Маршалек, О. В. Федченко, Metallofiz. Noveishie Tekhnol. **33**, № 7: 945 (2011).
54. Saltykov D.I., Protsenko S.I., I.M. Pazukha, Shkurdoda Yu.O. Concentration and heat treatment effects on magnetoresistive properties of three-layer film systems based on  $Fe_xCo_{100-x}$  and Cu // Thin Solid Films. – Elsevier, 2020. – P. 138422.
55. O.V. Bezdidko, Yu.O. Shkurdoda, I.O. Shpetnyi Electrical Conductivity and Magnetoresistive Properties of Film Alloys Based on Permalloy  $Fe_{0.5}Ni_{0.5}$  and Copper // J. Nano- Electron. Phys. – 2020. – V. 12., № 3. – P. 03034-1 - 03034-4.
56. L.V. Odnodvoretz, I.Yu. Protsenko, Yu.M. Shabelnyk, N.I. Shumakova Correlation Between the Entropy Degree and Properties of Multi-component (High-entropy) Film Materials // J. Nano- Electron. Phys. – 2020. – V. 12, № 2. – P. 02014
57. I.O. Shpetnyi Magnetic and Magnetoresistive Properties of Thin Film Alloys Based on Cobalt and Copper // J. Nano- Electron. Phys. – 2020. – V. 12, № 5. – P. 05030
58. Vorobiov S., Pylypenko O., Bereznyak Yu., Pazukha I., Čižmar E., Orendáč M., Komanicky V. Magnetic properties, magnetoresistive, and magnetocaloric



- effects of AlCrFeCoNiCu thin-film high-entropy alloys prepared by the co-evaporation technique // *Applied Physics A*. – 2021. – V. 127. – P. 179.
59. Shpetnyi I., Vorobiov S., Komanicky V., Iatsunskyi I., Grebinaha V., Gorobets Yu., Tkachenko V., Skokowski P., Luci'nski T., Jurga S. Thickness and composition dependences of magnetic and magnetoresistive properties of  $\text{Co}_x\text{Ag}_{100-x}$  alloys thin films // *J. Magn. Magn. Mater.* – 2021. – V. 527. – P. 167762.
60. Shpetnyi I.O., Pak V.Ya., Shkurdoda Yu.O., Vorobiov S.I., Derecha D.O., Hruzevych A.V., Sharai I.V., Kravets A.F., Gorobets Yu.I., Satrapinsky L., Luci'nski T. Influence of the magnetic field on the structural characteristics of granular  $\text{Co}_x\text{Ag}_{100-x}$  thin film alloys // *Thin Solid Films*. – 2021. – V. 724. – P. 138613.
61. Shpetnyi I.O., Protsenko I.Yu., Vorobiov S.I., Grebinaha V.I., Satrapinsky L., Luci'nski T., Influence of composition on the structural-phase state, electrophysical and magnetotransport properties of alloy thin films based on Co and Cu // *Vacuum*. – 2021. – V. 187. – P. 110141.
62. Pazukha I.M., Shkurdoda Yu.O., Petrenko R.M., Lohvynov A.M., Pylypenko O.V. Peculiarities of magnetoresistance of  $[\text{Fe}/\text{SiO}]_n$  discontinuous multilayers // *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*. – 2021. – V.33. – P. 1119-1124.
63. Pazukha I.M., Shkurdoda Yu.O., Petrenko R.M., Lohvynov A.M., Pylypenko O.V. Size and heat treatment effects in the electrical conduction of the  $[\text{Fe}/\text{SiO}]_n$  discontinuous multilayers // *Physica B: Condensed Mater.* – 2021. – V. 618. – P. 413171.
64. Шпетний І.О., Шкурдода Ю.О., Салтиков Д.І., Гребинаха В.І., Воробійов С.І. Магніторезистивні та магнітні властивості тришарових нанокристалічних плівок  $\text{Py}/\text{Ag}/\text{Py}$  // *Металлофізика і новішіе технологии*. – 2021. Т. 43, № 1. – С. 129 – 142.
65. Shpetnyi I.O., Tyschenko K.V., Pak V.Ya., Duzhyi B. V., Shkurdoda Yu.O., Protsenko I.Yu. Structural-Phase State and Magnetotransport Properties of Thin

- Film Alloys Based on Permalloy and Copper // J. Nano- Electron. Phys. – 2021. – V.13, № 1, – P. 01020.
66. Bezdidko O.V., Nepijko S.A., Shkurdoda Yu.O., Shabelnyk Yu.M. Structure and Magnetoresistive Properties of Three-layer Films  $\text{Co}_{(1-x)}\text{Cr}_x/\text{Cu}/\text{Co}$  // J. Nano- Electron. Phys. – 2021. – V.13, № 3, – P. 03042.
67. Pazukha I.M., Petrenko R.M., Shkurdoda Yu.O., Lohvynov A.M., Shchotkin V.V., Dolgov-Gordiichuk S.R., Dekhtyaruk L.V. Electrical conductance and magnetoresistive properties of layered structures based on Fe and SiO // Nanosistemi, Nanomateriali, Nanotehnologii. – 2021. – V. 19, No 1. – P. 35-43.
68. Pazukha I.M., Shkurdoda Y.O., Shchotkin V.V., Pylypenko O.V., Mykytyn V.Z. Peculiarity of Magnetoresistance of Composite Materials Based on Co and SiO // Journal of Nano- and Electronic Physics. – 2021. – V. 13, No 4. – P. 04035.
69. Pazukha I.M., Saltykov D.I., Shkurdoda Yu.O., Saltykova A.I., Loboda V.B., Shchotkin V.V., Dolgov-Gordiichuk S.R. Magnetoresistive Effect and Magnetic Parameters of Nanocrystalline Thin-film Alloys Based on Co, Fe and Cu // Proceedings of IEEE International Conference on “Nanomaterials: Applications & Properties” (NAP-2021). – 2021. – P. MTFC27.
70. Dekhtyaruk L.V., Shabelnyk Yu.M., Kharchenko A.P., Saltykova A.I., Chornous A.M., Shkurdoda Yu.O. Explanation of Giant Magnetoresistance Effect in Magnetic Co/Cu/Co Sandwiches // Proceedings of IEEE International Conference on “Nanomaterials: Applications & Properties” (NAP-2021). – 2021. – P. NMM09-1.
71. Bezdidko O.V., Dekhtyaruk L.V., Shabelnyk Yu.M., Shkurdoda Yu.O., Chornous A.M. Giant Magnetoresistive Effect in Magnetically Ordered Asymmetric Sandwiches Based on Co and Fe // Proceedings of IEEE International Conference on “Nanomaterials: Applications & Properties” (NAP-2021). – 2021. – P. NMM08-1.