

## АНОТАЦІЯ

*Салтиков Д.І.* Особливості електротранспорту в плівкових нанорозмірних системах на основі феромагнітних сплавів. – На правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 105 – прикладна фізика та наноматеріали. – Сумський державний університет, Суми, 2020.

Дисертаційна робота присвячена встановленню загальних закономірностей впливу температури і розмірних та концентраційних ефектів на електро- та магніторезистивні властивості одношарових плівок  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  та тришарових плівкових систем  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$ .

Встановлено закономірності формування кристалічної структури і фазового складу, поведінки електрофізичних (питомий опір, ТКО), магніторезистивних (анізотропний і гігантський магнітоопір) і їх взаємозв'язку для плівкових сплавів та тришарових систем на їх основі в інтервалі товщин  $d = 5 - 80$  нм і концентрацій  $C_{\text{Fe}} = 10 - 90$  ат.% у температурному інтервалі  $120 - 700$  К.

Виявлено, що свіжосконденсовані плівкові сплави  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  ( $x > 0,3$ ) мають фазовий склад, що відповідає ОЦК -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  з параметром ґратки  $a = 0,292 - 0,293$  нм. При  $x < 0,3$  фазовий склад свіжосконденсованих одношарових плівок відповідає ОЦК -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x-y}$  + ГЦП -  $\text{Co}_y$  з параметром ґратки  $a = 0,291 - 0,294$  нм та  $a_{\text{Co}} = 0,250 - 0,253$  нм і  $c_{\text{Co}} = 0,410 - 0,413$  нм. Після відпалювання за  $700$  К для плівок з  $x > 0,3$  фіксується ОЦК -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  та при  $x < 0,3$  ОЦК -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x-y}$  + ГЦК -  $\text{Co}_y$ . Фазовий склад свіжосконденсованих тришарових плівок з  $x < 0,3$  відповідає ОЦК -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x-y}$  + ГЦК -  $\text{Cu}$  + ГЦП -  $\text{Co}_y$ . Для тришарових плівок  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  з  $x > 0,3$   $d_{\text{F}} = 20 - 40$  нм та  $d_{\text{N}} = 5 - 20$  нм фазовий склад відповідає евтектиці ОЦК -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  + ГЦК - т.р.  $\text{Cu}(\text{Fe})$  або т.р.  $\text{Cu}(\text{Co})$  незалежно від умов термообробки. Після термообробки таких зразків з  $x < 0,3$  за температури

700 К фазовий склад відповідає ОЦК -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  + ГЦК -  $\text{Cu}(\text{Fe})$  або т.р  $\text{Cu}(\text{Co})$ .

З'ясовано, що плівки сплаву  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  є гомогенними за товщиною. Вивчено дифузійні процеси у плівкових системах  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  з  $d_F = 30 - 40$  нм та  $d_N = 10 - 20$  нм та показано, що у них в цілому зберігається індивідуальність окремих шарів. Термо- та іонно-стимульована дифузія спричиняє дифузію атомів Fe та Co, які є результатом дисоціації молекул FeCo.

Встановлено закономірності в польових залежностях анізотропного та ізотропного магнітоопору для одношарових плівкових матеріалів та тришарових структур із різною товщиною магнітних та немагнітних шарів та концентрацією компонент в шарах  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$ . Експериментально виявлені інтервали концентрацій і товщин шарів, у яких спостерігався анізотропний (позитивний поздовжній і негативний поперечний магнітоопір) та ізотропний (негативний поздовжній і поперечний магнітоопір) характер магнітоопору.

Результати експериментальних досліджень впливу відпалювання на величину ізотропного магнітоопору та вид магніторезистивних петель показують, що характер поведінки МО і його величина в загальному випадку визначаються як товщиною феромагнітних і немагнітних шарів, так і концентрацією компонент у шарах. Експериментально показано, що при  $d_F = 25 - 40$  нм та  $d_N = 3 - 20$  нм в усіх досліджуваних свіжосконденсованих тришарових системах спостерігається ізотропний характер магнітоопору, обумовлений спін-залежним розсіюванням електронів провідності. Максимальне значення ізотропного МО в 1 % при кімнатній температурі для невідпалених плівок спостерігається для системи  $\text{Fe}_{0,1}\text{Co}_{0,9}/\text{Cu}/\text{Fe}_{0,1}\text{Co}_{0,9}$  при однакових товщинах магнітних шарів і товщині прошарку 3 нм. При термомагнітному поетапному відпалюванні (через проміжні температури 400, 500 К) для всіх систем за виключенням зразків з утворенням гранульованого стану спостерігається перехід від ізотропного до анізотропного характеру магнітоопору. Для структур з концентрацією  $C_{\text{Fe}} = 10 - 20$  ат. % та відносно тонкими шарами ( $d_F = 10 - 20$  нм,  $d_N = 5 - 15$  нм)

спостерігається анізотропний характер магнітоопору в вихідному стані. Відпалювання за температури 550 К призводить до появи ізотропного магнітоопору, що обумовлено формуванням гранульованого сплаву на основі Cu та атомів Co. Термообробка зразків незалежно від вмісту компонент та з  $d_F = 20 - 30$  нм,  $d_N = 5 - 15$  нм при температурі 400, 550 К стимулює збільшення ізотропного МО до 3,5 % при кімнатній температурі. Зниження температури вимірювання від кімнатної до 120 К приводить до збільшення амплітуди ізотропного магнітоопору в 1,2 – 1,5 рази

Отримані експериментальні результати свідчать про досить велику температурну стабільність властивостей плівкових структур на основі сплаву  $Fe_xCo_{1-x}$  та Cu, що дозволяє рекомендувати при виготовленні магніторезистивних елементів, як один з етапів технологічного процесу, термостабілізаційне відпалювання у вакуумі за температури 550 або 700 К безпосередньо після осадження плівок.

Показано, що на температурних залежностях питомого опору тришарових плівок незалежно від концентрації компонент фіксуються три характерні ділянки, на яких реалізується розсіювання електронів на дефектах кристалічної будови, межах зерен та інтерфейсах.

Експериментально та теоретично показано, що із ростом товщини плівкового сплаву  $Fe_xCo_{1-x}$  та товщини прошарку у тришарових системах ( $d_F = 30$  нм) значення ТКО зростає. Експериментальні та розрахункові дані співпадають з точністю до 20%.

Вивчені фізичні процеси в плівкових матеріалах із точки зору їх можливого застосування як чутливих елементів з високою температурною та часовою стабільністю багатофункціональних сенсорних та інформаційних приладів різного призначення.

**Ключові слова:** плівкові матеріали, структурно-фазовий стан, питомий опір, дифузія, гігантський магнітоопір, анізотропний магнітоопір, спін-залежне розсіювання.

## Список опублікованих праць за темою дисертації

### 1. Наукові праці, у яких опубліковані основні наукові результати

1. **Saltykov D. I.**, Shkurdoda Yu.O., Protsenko I. Yu. Phase state, crystal structure, diffusion processes and magnetoresistance of three-layer structures based on  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  ( $x \cong 0,5$ ) and Cu. *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.* 2019. Vol. 41, № 5. P. 595 – 605.
2. **Saltykov D. I.**, Shkurdoda Yu. O., Protsenko I. Yu. Temperature Effects in Magnetoresistive Properties of Three-Layer Films Based on  $\text{Fe}_{80}\text{Co}_{20}$  Alloy and Copper. *Nanosistemi, Nanomateriali, Nanotehnologii.* 2019. Vol. 10, № 1. P. 0101 – 0109.
3. **Салтиков Д. І.**, Шкурдода Ю. О., Проценко І. Ю. Структурно-фазовий стан та електропровідність пліткових структур на основі ОЦК фази сплаву Fe-Co та Cu. *Ж. нано-електрон. фіз.* 2018. Том 10, № 3. С. 03024-1 – 03024-6.
4. **Салтиков Д. І.**, Шкурдода Ю. О., Проценко І. Ю. Вплив умов термообробки на магніторезистивні властивості тришарових структур  $\text{Fe}_{0,2}\text{Co}_{0,8}/\text{Cu}/\text{Fe}_{0,2}\text{Co}_{0,8}$ . *Ж. нано-електрон. фіз.* 2018. Том 10, № 4. С. 04031-1 – 04031-5.

### 2. Наукові праці апробаційного характеру

5. **Saltykov D. I.**, Shkurdoda Yu. O., Protsenko I. Yu. Magnetoresistance of  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  ( $x \cong 0.5$ ) Film Alloys and Three-Layer Structures Based on them. *Nanomaterials: Applications and Properties-2017: Proceedings of 7th International Conference.* September 10 – 15, 2017. Zatoka: Sumy State University, 2017. №2. P. 02NTF35 (4pp.).
6. **Салтиков Д. І.** Вплив товщини немагнітного прошарку на польові залежності наносистем  $\text{Co}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x}$ . *Фізика, електроніка, електротехніка – 2017: Матеріали та програма науково-технічної конференції, 17 – 21 квітня 2017 р.* Суми: СумДУ, 2017. С. 100.
7. **Салтиков Д. І.**, Проценко І. Ю., Шкурдода Ю. О. Магніторезистивні властивості плівкового сплаву  $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ . *ЕВРИКА-2017: Міжнародна*

конференція студентів і молодих науковців з теоретичної та експериментальної фізики, 16 – 18 травня 2017 р. Львів: ЛНУ ім. І. Франка, 2017. С. А14.

8. **Салтиков Д. І.** Елементний склад плівкових систем на основі  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  та Cu. *Фізика, електроніка, електротехніка – 2018*: матеріали та програма науково-технічної конференції, 05 – 09 лютого 2018 р. Суми: СумДУ, 2018. С. 67.

9. **Салтиков Д. І.,** Проценко І. Ю., Шкурдода Ю. О. Магнітоопір тришарових плівок на основі сплаву  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  ( $x \cong 0,2$ ) та Cu. *ЕВРИКА-2018*: Міжнародна конференція студентів і молодих науковців з теоретичної та експериментальної фізики, 15 – 17 травня 2018 р. Львів:ЛНУ ім. І. Франка, 2018. С. А15.

10. **Салтиков Д. І.** Магніторезистивні властивості тришарових плівок на основі сплаву  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  та Cu. *Фізика, електроніка, електротехніка – 2019*: Матеріали та програма науково-технічної конференції, 23 – 26 квітня 2019 р. Суми: СумДУ, 2019. С. 54.

11. **Saltykov D. I.,** Poduremne D. V., Shkurdoda Yu. O., Protsenko S. I. Influence of the Conditions of Heat Treatment and Thickness of the Layers on the Magnetoresistive Properties of Three-layer Films Based on  $\text{Fe}_{80}\text{Co}_{20}$  Alloy and Cu. XVII Міжнародна фреїківська конференція з фізики і технології тонких плівок та наносистем, 20 – 25 травня 2019 р. Івано-Франківськ: ПНУ ім. В. Стефаника, 2019. С. 329.

12. **Saltykov D. I.,** Shkurdoda Yu. O. Phase state, crystal structure of thin films of  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  alloy and three-layer structures based on it with a Cu layer. *Low Temperature Physics: X International Conference for Professionals and Young Scientists*, June 3 – 7, 2019. Kharkiv: B. Verkin ILTPE of NASU, 2019. P. 119.

## SUMMARY

*Saltykov D. I.* Features of electron transport in the nanoscale film systems based on ferromagnetic alloys. Manuscript

Ph. D. thesis submitted for the degree of doctor of philosophy, specialty 105 – “Applied physics and nanomaterials”. – Sumy state University, Sumy, 2020.

Ph. D. thesis is devoted to the established general laws of the influence of temperature and size and concentration effects on the electro- and magnetoresistive properties of  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  single-layer films and  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  three-layer film systems.

The regularities of formation of crystalline structure and phase composition, behavior of electrophysical (resistivity and TCR), magnetoresistive (anisotropic and giant magnetoresistance) and their interconnection for film alloys and three-layer systems on their basis are established in the interval of thickness  $d = 5 - 80$  nm and concentrations of  $C_{\text{Fe}} = 10 - 90$  at.% in the temperature range of  $120 - 700$  K.

It is revealed that as-deposited  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  film alloys ( $x > 0.3$ ) have a phase composition corresponding to bcc -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  with the lattice parameter  $a = 0.292 - 0.293$  nm. At  $x < 0.3$ , the phase composition of the as-deposited single-layer films corresponds to bcc -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x-y} + \text{hcp} - \text{Co}_y$  with the lattice parameter  $a = 0.291 - 0.294$  nm and  $a_{\text{Co}} = 0.250 - 0.253$  nm,  $c_{\text{Co}} = 0.410 - 0.413$  nm. After annealing at  $700$  K, the bcc -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  is fixed for films with  $x > 0.3$  and bcc-  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x-y} + \text{fcc} - \text{Co}_y$  is fixed at  $x < 0.3$ . The phase state of as-deposited three-layer films with  $x < 0.3$  corresponds to bcc -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x-y} + \text{fcc} - \text{Cu} + \text{hcp} - \text{Co}_y$ . For three-layer  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  films with  $x > 0.3$ ,  $d_{\text{F}} = 20-40$  nm and  $d_{\text{N}} = 5-20$  nm, the phase state corresponds to the eutectic of bcc -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x} + \text{fcc} - \text{s.s. Cu (Fe)}$  or s.s.  $\text{Cu(Co)}$ , regardless of the heat treatment conditions. After heat treatment of such samples with  $x < 0.3$  at a temperature of  $700$  K, the phase state corresponds to bcc -  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x} + \text{fcc} - \text{s.s. Cu (Fe)}$  or s.s.  $\text{Cu(Co)}$ . For films with  $x > 0.3$ , heat treatment does not change the phase state.

It is found that  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  film alloy are homogeneous in thickness. Diffusion processes in  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}/\text{Cu}/\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  film systems with  $d_F = 30 - 40$  nm and  $d_N = 10 - 20$  nm have been studied and it is shown that they generally preserve the identity of is retained. The thermal and ion-stimulated diffusion causes the mutual penetration of Fe and Co atoms, which are the result of dissociation of FeCo molecules.

The regularities in the field dependences of anisotropic and isotropic magnetoresistance for single-layer film materials and three-layer structures with different thicknesses of magnetic and non-magnetic layers and the concentration of components in  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  layers are established. The concentration and layers thickness ranges, in which anisotropic (positive longitudinal and negative transverse magnetoresistance) and isotropic (negative longitudinal and transverse magnetoresistance) character of magnetoresistance observed, have been identified.

The experimental results of the annealing effect on the isotropic magnetoresistance value and the shape of magnetoresistive loops show that the MR behavior and its magnitude in the general case are determined by both the thickness of the ferromagnetic and nonmagnetic layers, and the concentration of the components in the layers. It has been shown experimentally that for all investigated three-layer systems at  $d_F = 25 - 40$  nm and  $d_N = 3 - 20$  nm, the isotropic character of magnetoresistance as a result of the spin-dependent electron scattering is observed. The maximum value of isotropic MR of 1% at room temperature is observed for  $\text{Fe}_{0,1}\text{Co}_{0,9}/\text{Cu}/\text{Fe}_{0,1}\text{Co}_{0,9}$  as-deposited system with the same thickness of the magnetic and copper layers of 3 nm. In the case of thermomagnetic step-by-step annealing (through intermediate temperatures of 400, 500 K), the transition from isotropic to anisotropic nature of the magnetoresistance is observed. The exception is samples, in which the granular state forms. For structures with a concentration of  $C_{\text{Fe}} = 10 - 20$  at.% and relatively thin layers ( $d_F = 10 - 20$  nm,  $d_N = 5 - 15$  nm) the anisotropic nature of the magnetoresistance in the initial state is observed. Annealing at a temperature of 550 K results in an isotropic magnetoresistance, as a result of the granular alloy based on Cu and Co

atoms formations. The heat treatment at a temperature of 400, 550 K stimulates an increase in isotropic MR to 3.5 % at room temperature for the samples regardless of component composition and with  $d_F = 20 - 30$  nm,  $d_N = 5 - 15$  nm. Reducing the measurement temperature from room temperature to 120 K leads to an increase in the isotropic magnetoresistance magnitude by 1.2 – 1.5 times.

The obtained experimental results indicate sufficiently high temperature stability of the properties of film structures based on the alloy  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  and Cu. This allows recommending thermal annealing in vacuum at a temperature of 550 or 700 K directly after the film deposition as one of the stages of the technological process at the formation magnetoresistive elements.

It is shown that at the temperature dependencies of the resistivity of three-layer films, regardless of the component concentrations, three characteristic regions are fixed. These regions correspond to the realization of electron scattering on the defects of the crystal structure, grain boundaries, and interfaces, respectively.

It has been shown experimentally and theoretically that the TCR value grows at the increase of the  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  film alloy thickness and the spacer layer thickness in three-layer systems ( $d_F = 30$  nm). The experimental and calculated data agree with an accuracy of 20 %.

Physical processes in film materials studied from their possible application as sensitive elements with high temperature and time stability of multifunctional sensors and information devices for various purposes.

**Keywords:** film materials, structural-phase state, resistivity, diffusion, giant magnetoresistance, anisotropic magnetoresistance, spin-dependent scattering.

### **The publication list of the applicant of PhD thesis**

#### **1. The scientific works containing the main published scientific results**

1. **Saltykov D. I.**, Shkurdoda Yu. O., Protsenko I. Yu. Phase state, crystal structure, diffusion processes and magnetoresistance of three-layer structures based



on  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  ( $x \cong 0,5$ ) and Cu. *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.* 2019. Vol. 41, № 5. P. 595 – 605.

2. **Saltykov D. I.**, Shkurdoda Yu. O., Protsenko I. Yu. Temperature Effects in Magnetoresistive Properties of Three-Layer Films Based on  $\text{Fe}_{80}\text{Co}_{20}$  Alloy and Copper. *Nanosistemi, Nanomateriali, Nanotehnologii.* 2019. Vol. 10, № 1. P. 0101 – 0109.

3. **Saltykov D. I.** Shkurdoda Yu. O., Protsenko I. Yu. Structural-Phase State and Electrical Conductivity of Film Structures Based on FCC Phase of Fe-Co Alloy and Cu. *J. Nano- Electron. Phys.* 2018. Vol. 10, № 3. P. 03024-1 – 03024-6.

4. **Saltykov D. I.** Shkurdoda Yu. O., Protsenko I. Yu. Influence of Heat Treatment Conditions on the Magnetoresistive Properties of Three-layer Structures  $\text{Fe}_{0,2}\text{Co}_{0,8}/\text{Cu}/\text{Fe}_{0,2}\text{Co}_{0,8}$ . *J. Nano- Electron. Phys.* 2018. Vol. 10, № 4. P. 04031-1 – 04031-5.

## **2. The scientific works of an approbatory character**

5. **Saltykov D. I.**, Shkurdoda Yu. O., Protsenko I. Yu. Magnetoresistance of  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  ( $x \cong 0.5$ ) Film Alloys and Three-Layer Structures Based on them. *Nanomaterials: Applications and Properties-2017: Proceedings of 7th International Conference.* September 10 – 15, 2017. Zatoka: Sumy State University, 2017. №2. P. 02NTF35 (4pp.).

6. **Saltykov D. I.** Influence of non-magnetic layer thickness on field dependences Co/Cu / $\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x}$  nanosystems. *Physics, electronics, electrical engineering – 2017: Materials and Program of the Scientific and Technical Conference.* April 17 – 21, 2017. Sumy: SSU, 2017. P. 100.

7. **Saltykov D. I.**, Protsenko I. Yu., Shkurdoda Yu. O. Magnetoresistive Properties of  $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$  Film Alloy. *HEUREKA-2017: International conference of students and young researchers in theoretical and experimental physics.* May 16 – 18, 2017. Lviv: Ivan Franko National University of Lviv, 2017. P. A14.

8. **Saltykov D. I.** The elemental composition of the film systems based on  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  and Cu. *Physics, electronics, electrical engineering – 2018: Materials and*

Program of the Scientific and Technical Conference, February 05 – 09, 2018. Sumy: SSU, 2018. P. 67.

9. **Saltykov D. I.**, Protsenko I. Yu., Shkurdoda Yu. O. Magnetoresistance of three-layer films based on  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  ( $x \cong 0,2$ ) and Cu alloy. *HEUREKA-2018: International conference of students and young researchers in theoretical and experimental physics*. May 15 – 17, 2018. Lviv: Ivan Franko National University of Lviv, 2018. P. A15.

10. **Saltykov D. I.** Magnetoresistive properties of three-layer films based on  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  and Cu alloy. *Physics, electronics, electrical engineering – 2019: Materials and Program of the Scientific and Technical Conference*. April 23 – 26, 2019. Sumy: SSU, 2019. P. 54.

11. **Saltykov D. I.**, Poduremne D. V., Shkurdoda Yu. O., Protsenko S. I. Influence of the Conditions of Heat Treatment and Thickness of the Layers on the Magnetoresistive Properties of Three-layer Films Based on  $\text{Fe}_{80}\text{Co}_{20}$  Alloy and Cu. XVII International Freik conference on physics and technology of thin films and nanosystems. May 20 – 25, 2019. Ivano-Frankivsk: Vasyl Stefanyk Precarpathian National University, 2019. P. 329.

12. **Saltykov D. I.** Shkurdoda Yu. O. Phase state, crystal structure of thin films of  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$  alloy and three-layer structures based on it with a Cu layer. *Low Temperature Physics: X International Conference for Professionals and Young Scientists*, June 3 – 7, 2019. Kharkiv: B. Verkin ILTPE of NASU, 2019. P. 119.