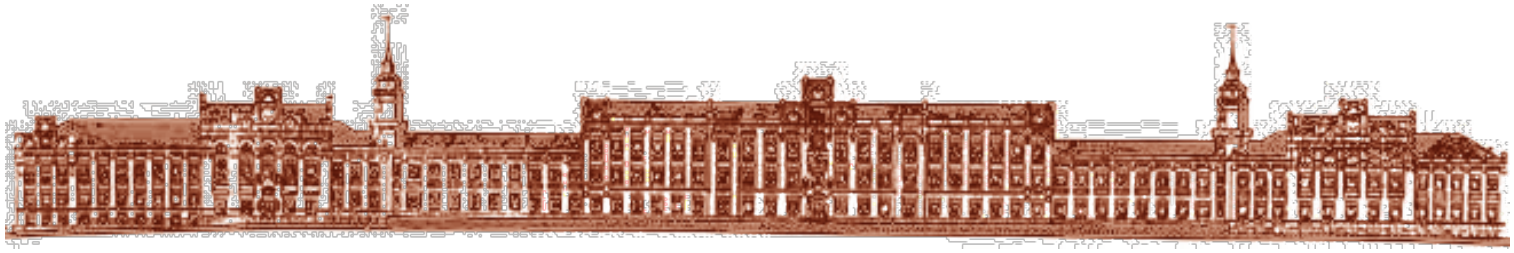
Національний технічний університет України
“Київський політехнічний інститут імені Ігоря Сікорського”

д.ф.-м.н., ст. дослідник
Владимирський Ігор Анатолійович

# Нанорозмірні плівкові структури з магнітними і немагнітними шарами для сучасних технологій спінтроніки та наноелектроніки

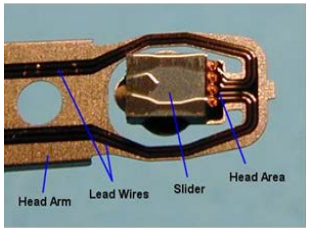
**Наукова робота на здобуття Премії Президента України для молодих учених в 2022 році**



2022

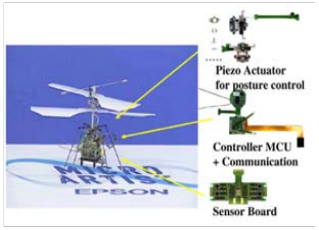
# Застосування тонких феромагнітних плівок у високих технологіях спінтроніки та наноелектроніки

MR writing/reading heads

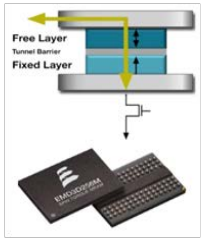



Hard disk drives

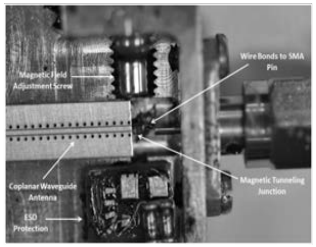
Films PMs for MEMS devices



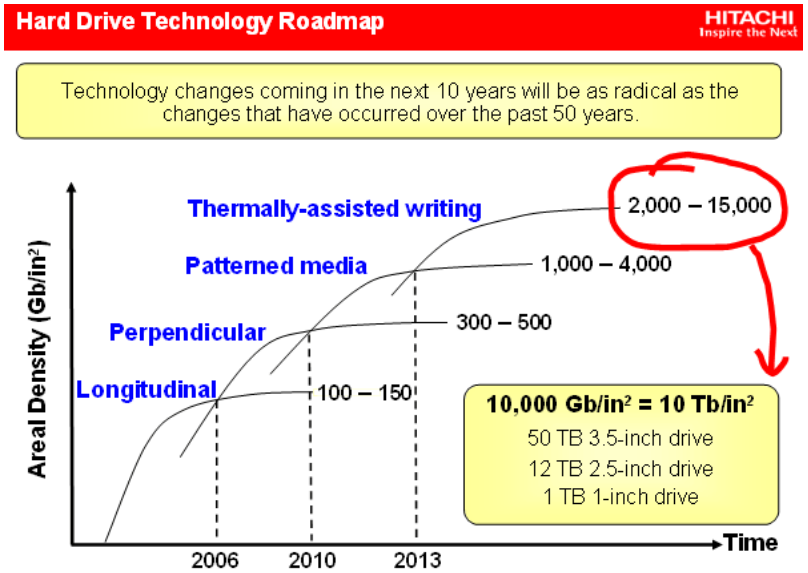

Everspin-MRAM




Microwave spin detectors



## Збільшення щільності магнітного запису інформації на жорсткі диски з часом




http://www.ixbt.com/storage/hdd50years.shtml

Фактор термічної стабільності $\Delta = \frac{E_B}{K_B T} = \frac{K_U V}{K_B T}$

Струм перемикання $I_c \sim \alpha M_S H_K$

**Подальше збільшення щільності інтеграції функціональних елементів та щільності магнітного запису інформації вимагає використання нанорозмірних феромагнітних матеріалів з якомога меншим розміром зерен і надвисокими значеннями енергії магнітно-кристалічної анізотропії**

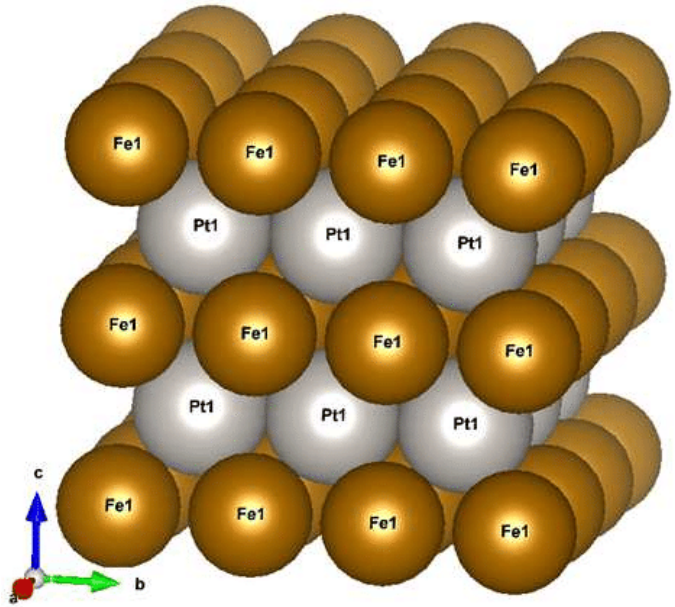
# $L1_0$ впорядковані тонкі плівки – перспективні матеріали для застосування у високих технологіях наноелектроніки і спінтроніки

| | Матеріал | $K_U$, $MJ/m^3$ | $M_S$, $T$ |
|---|---|---|---|
| Сплави на основі Co | Co | 0.45 | 1.76 |
| | CoCrPt | 0.4 | 0.55 |
| Багатошарові плівки | Co/Pd | 0.5 | 0.63 |
| Фази $L1_2$ | $CoPt_3$ | 0.4 | 0.65 |
| | $Co_3Pt$ | 2.0 | 1.38 |
| Фази $L1_0$ | FePd | 1.8 | 1.38 |
| | CoPt | 3.0 - 5.0 | 1.0 |
| | FePt | 6.6 - 10.0 | 1.4 |
| | MnAl | 1.7 | 0.7 |

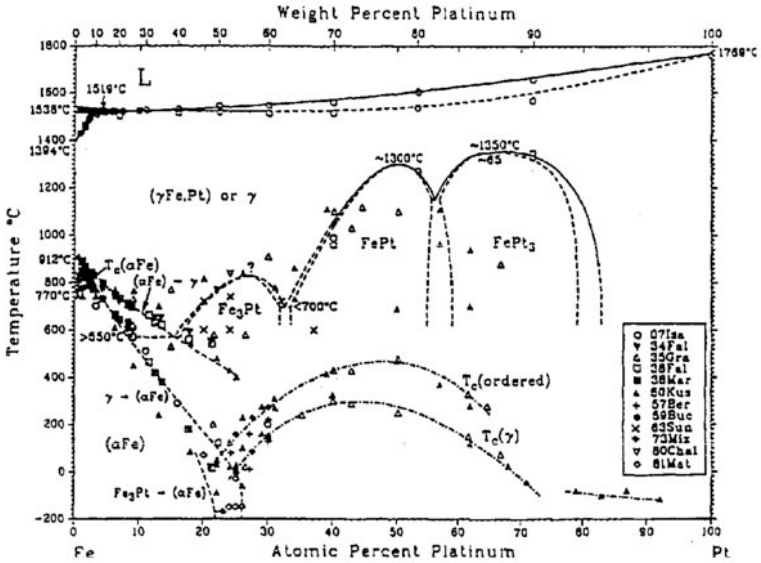
D. Weller and A. Moser *IEEE Trans. Magn.* 35 (1999) 4423

# Ознаки $L1_0$ впорядкованої фази

## Тетрагональне спотворення кристалічної гратки і закономірне чергування атомних площин двох елементів уздовж осі, перпендикулярної поверхні матеріалу




S.A. Khan et al. Phys. Rev. B 94 (2016) 144436

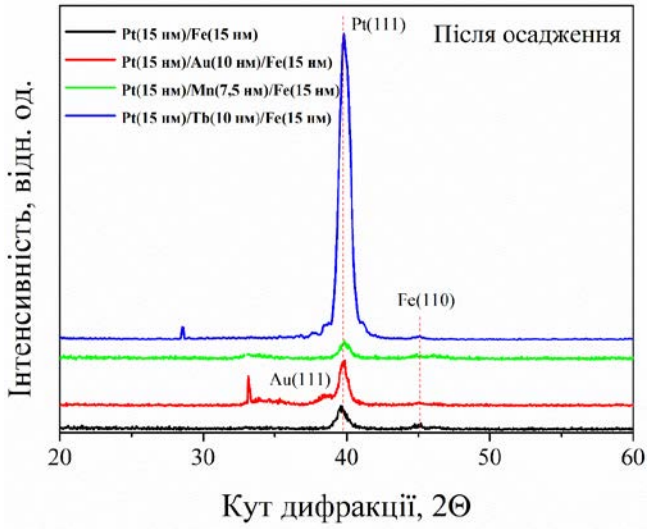



**Фактор нанорозмірності: осадження плівкових матеріалів за кімнатної температури → невпорядкована структура *A1*-FePt**

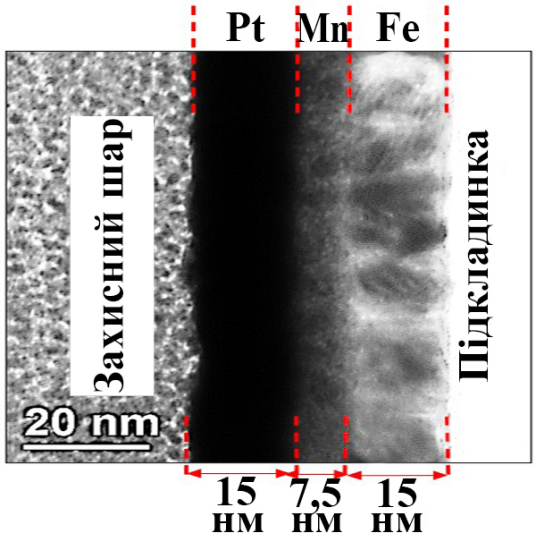
**МЕТА роботи –** розробка нових сполучень плівкових матеріалів та конфігурацій багатошарових структур на основі Fe/Pt, а також режимів їхньої термічної обробки у різних середовищах в широких температурних інтервалах з метою формування термічно-стабільної фази $L1_0$-FePt з перспективними для наноелектроніки та спінтроніки властивостями.

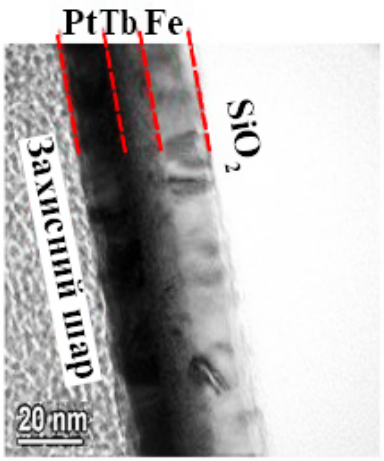
# Фазоутворення в нанорозмірних системах Pt(15 нм)/X(10 нм)/Fe(15 нм) (X = Au, Mn, Tb) стан після осадження

## Результати структурного аналізу

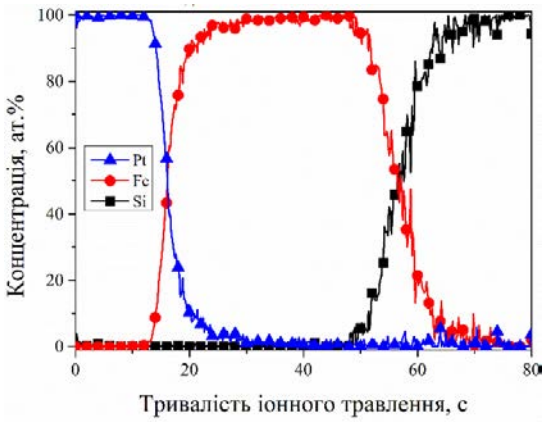


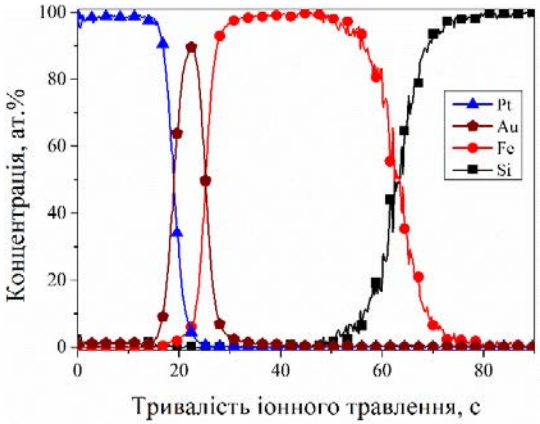

## Зображення ТЕМ



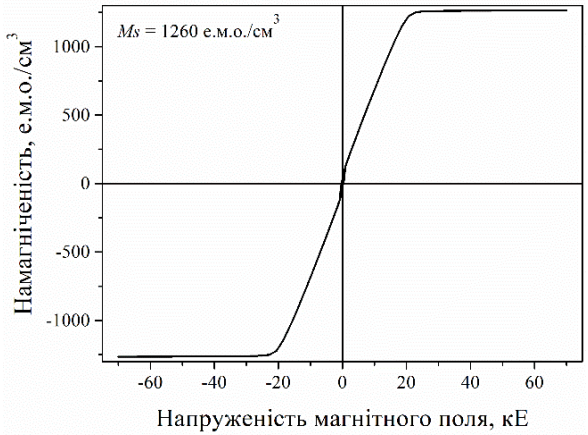




## Пошарові хімічні розподіли



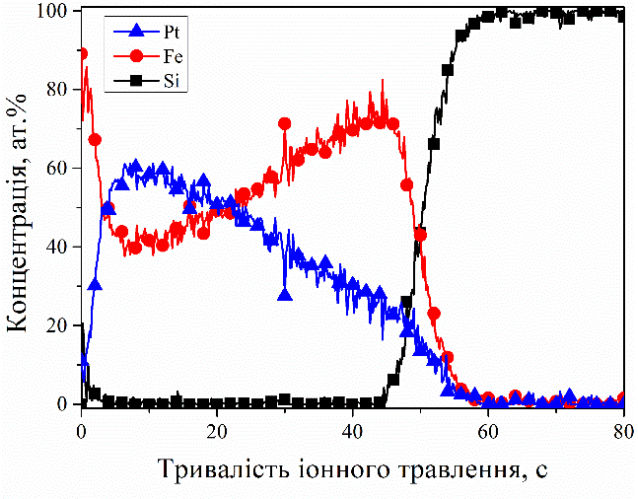




## Магнітні властивості

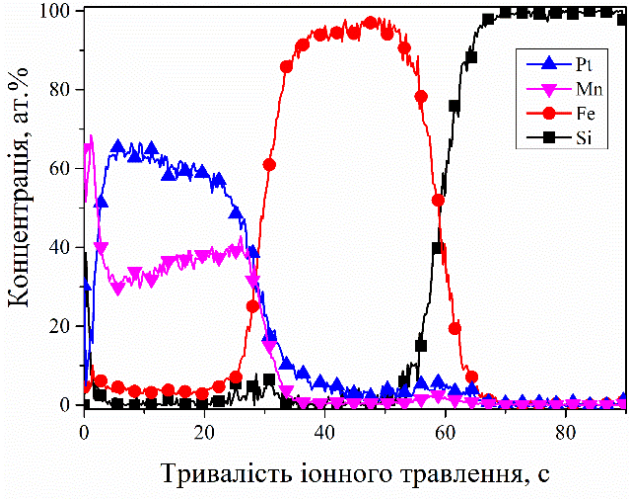


# Особливості перебігу дифузійних процесів у наносистемах Pt/X/Fe (X = Au, Mn, Tb) *T* = 260 ºC

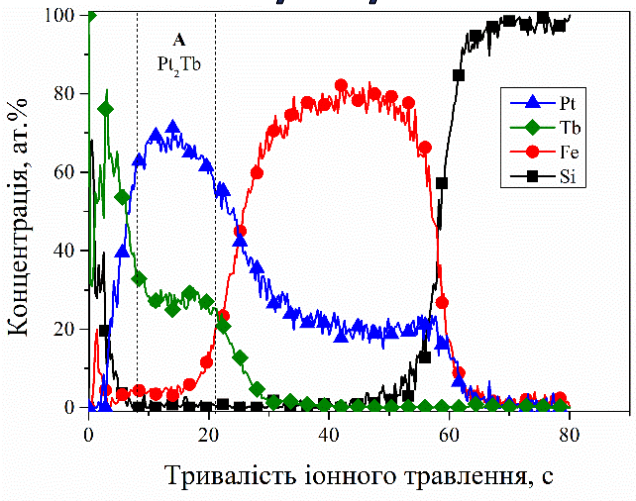
**Pt/Fe**



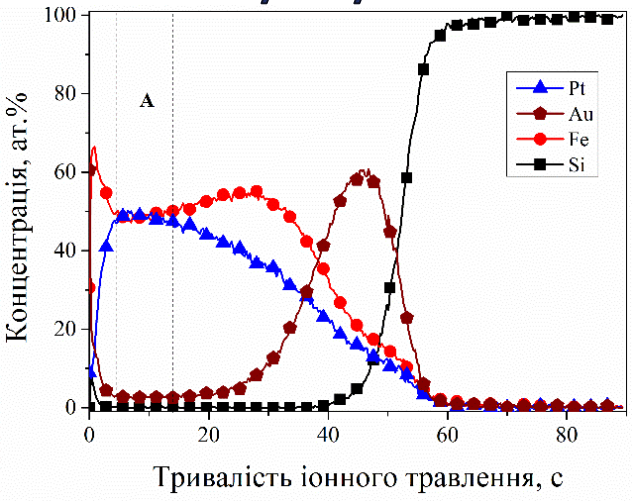

**Pt/Mn/Fe**




**Pt/Tb/Fe**




**Pt/Au/Fe**



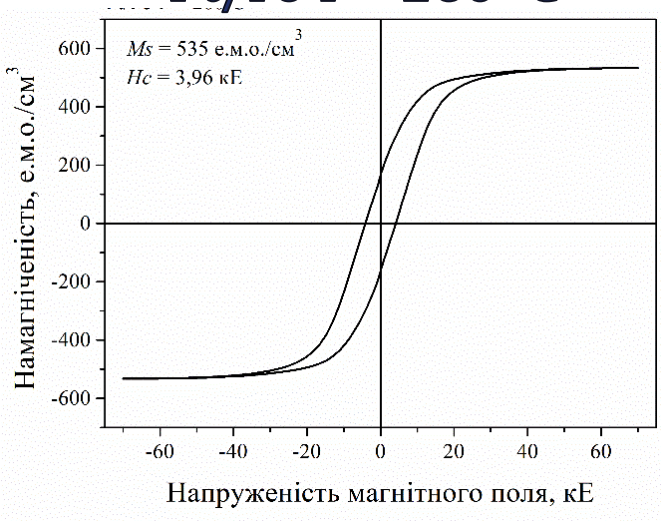

**Pt/Mn/Fe → формування фази *L1₀*-MnPt**

**Pt/Tb/Fe → формування фази $Pt_2Tb$**

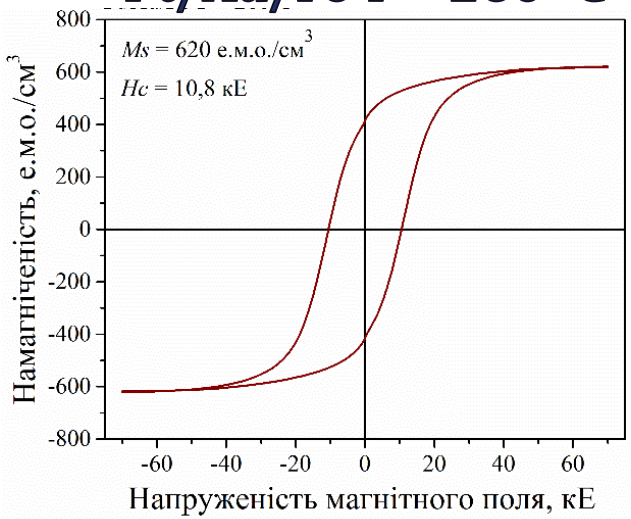
**Pt/Au/Fe → прискорення взаємної дифузії між Pt і Fe**

# Вплив додаткового проміжного шару Au на коерцитивну силу

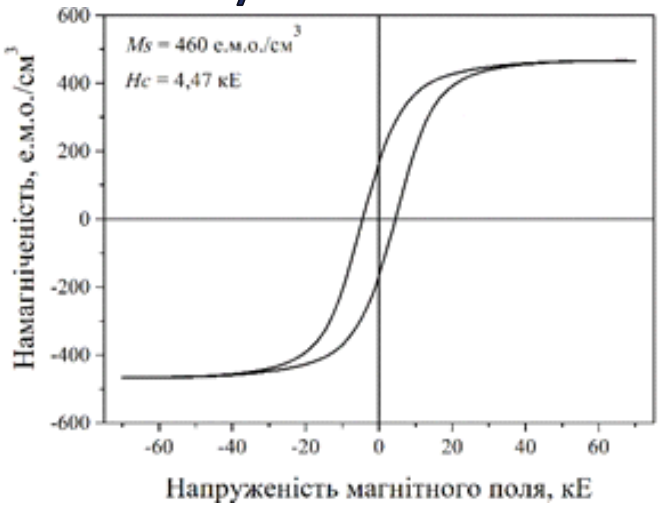
## Pt/Fe $T$ = 260 °C



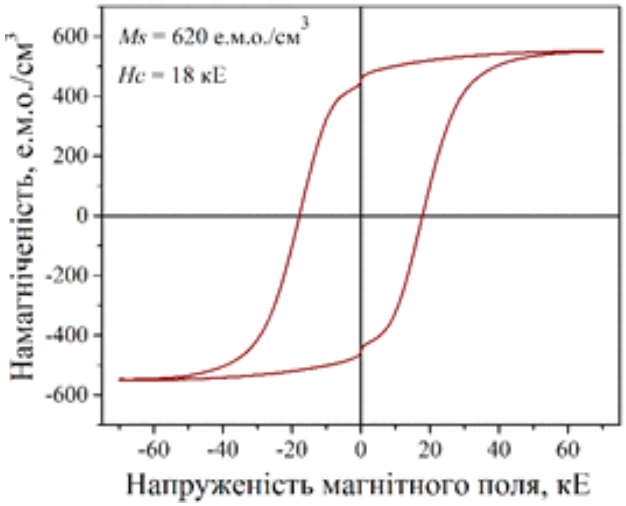

## Pt/Au/Fe $T$ = 260 °C




## Pt/Fe $T$ = 380 °C




## Pt/Au/Fe $T$ = 380 °C



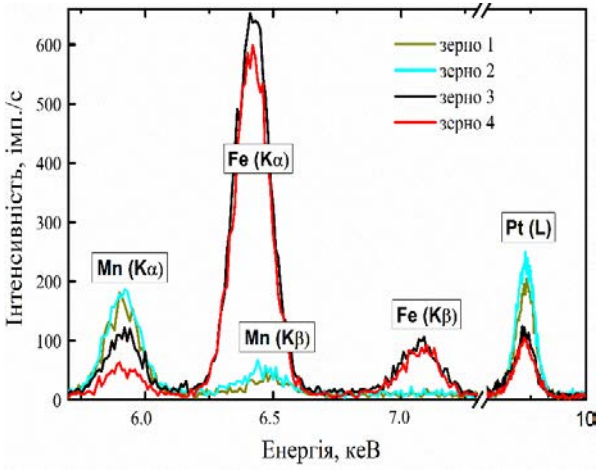

**$T$ = 260 °C**
**Система Pt/Fe:**
**$H_c$ = 3,96 кЕ**
**Система Pt/Au/Fe:**
**$H_c$ = 10,8 кЕ**

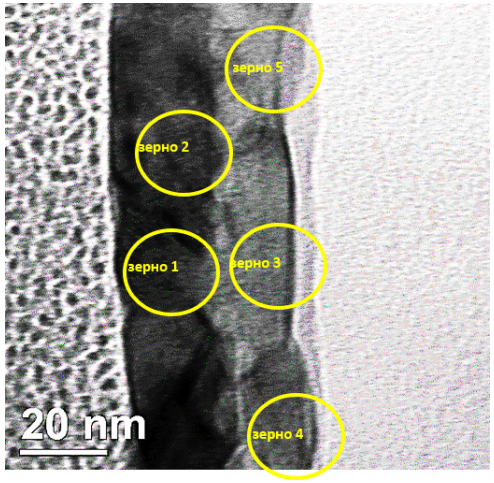
**Збільшення $Hc$ до 4 разів внаслідок додавання проміжного шару Au**

**$T$ = 380 °C**
**Система: Pt/Fe**
**$H_c$ = 4,47 кЕ**

**Система Pt/Au/Fe:**
**$H_c$ = 18 кЕ**

# Особливості фазоутворення в гетерогенній системі Pt(15 нм)/Mn(7,5 нм)/Fe(15 нм) $T$ = 450 °C

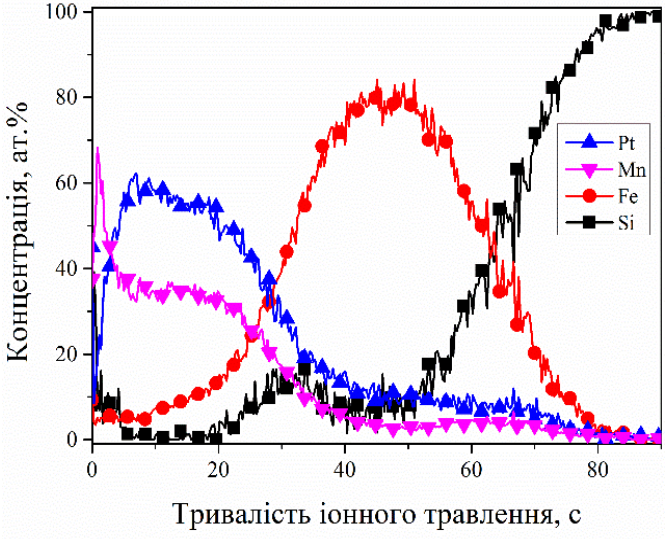


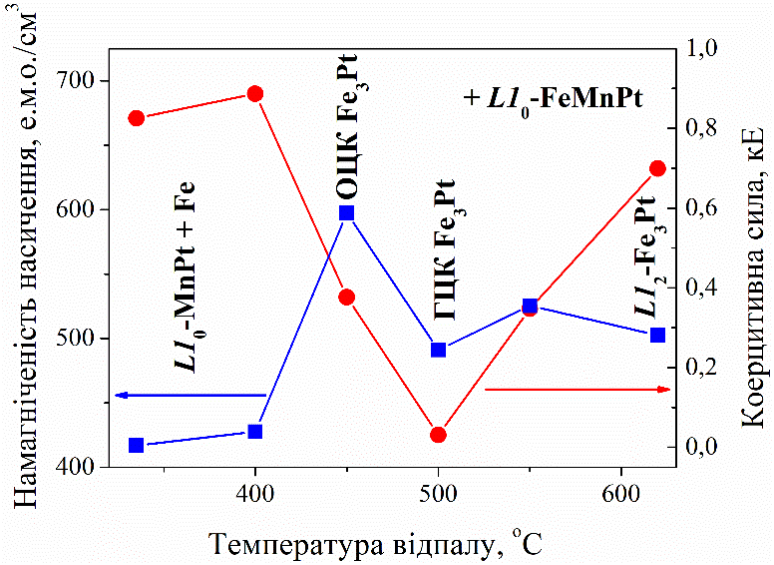




**Нанорозмірні зерна мають різний хімічний склад Співіснування фаз ОЦК $Fe_3Pt$ та $L1_0$-MnPt**

$$\text{Pt/Mn/Fe} \xrightarrow{280^\circ C} L1_0\text{-MnPt} + \alpha\text{-Fe} \xrightarrow{450^\circ C} L1_0\text{-FeMnPt} + \text{ОЦК-}Fe_3Pt \xrightarrow{500^\circ C} L1_0\text{-FeMnPt} +$$

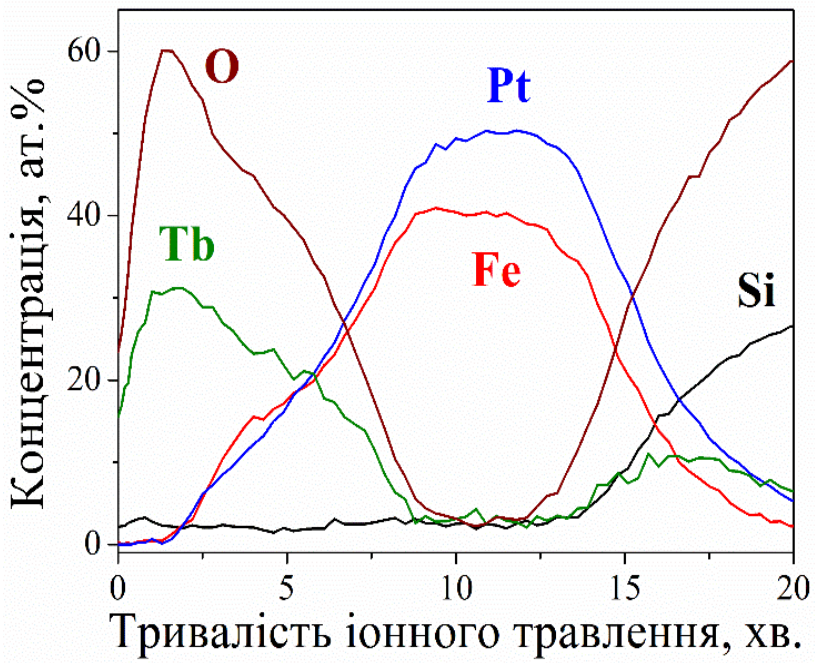
$$\text{ГЦК-}Fe_3Pt \xrightarrow{620^\circ C} L1_0\text{-FeMnPt} + L1_2\text{-}Fe_3Pt.$$



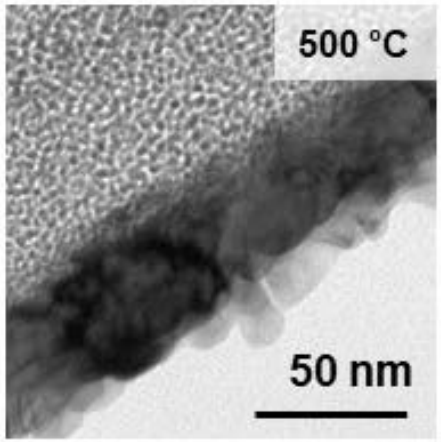



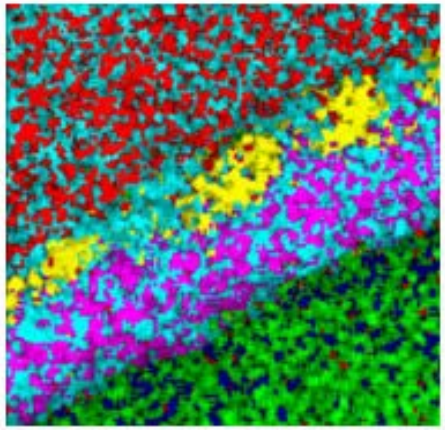
# Термодифузійне фазоутворення в гетерогенній системі Pt(15 нм)/Tb(10 нм)/Fe(15 нм)

## Інтервал температур 215 – 620 °C




$$\mathrm{Pt/Tb/Fe} \xrightarrow{215^\circ C} \mathrm{Tb} + \mathrm{Pt_2Tb} + \mathrm{Fe} \xrightarrow{280^\circ C} \mathrm{Tb} + \mathrm{Pt_2Tb} + A1\text{-}\mathrm{FePt} + \mathrm{Fe} \xrightarrow{350^\circ C} \mathrm{TbO_2} + \mathrm{Pt_2Tb} + A1\text{-}\mathrm{FePt} + \mathrm{Fe} \xrightarrow{450^\circ C} \mathrm{TbO_2} + \mathrm{Pt_2Tb} + \mathrm{Tb} + A1\text{-}\mathrm{FePt} + \mathrm{Fe}\ (+ L1_0\text{-}\mathrm{FePt}) \xrightarrow{500^\circ C} \mathrm{TbO_2} + \mathrm{Pt_2Tb} + \mathrm{Tb} + A1\text{-}\mathrm{FePt} + \mathrm{Fe} + L1_0\text{-}\mathrm{FePt} \xrightarrow{550-620^\circ C} \mathrm{TbO_2} + L1_0\text{-}\mathrm{FePt}$$

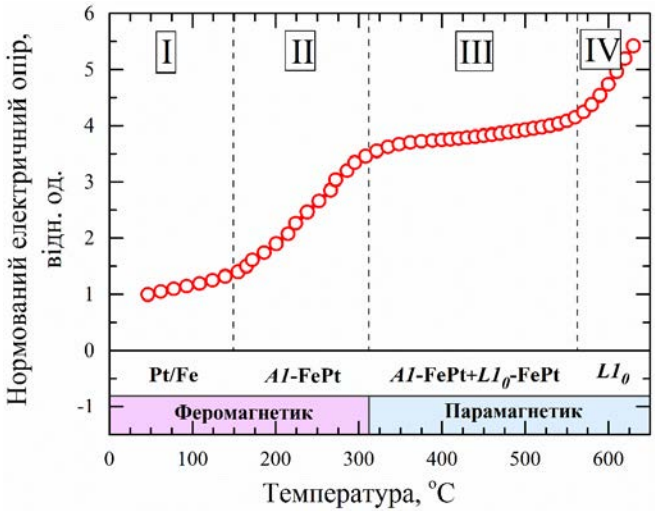


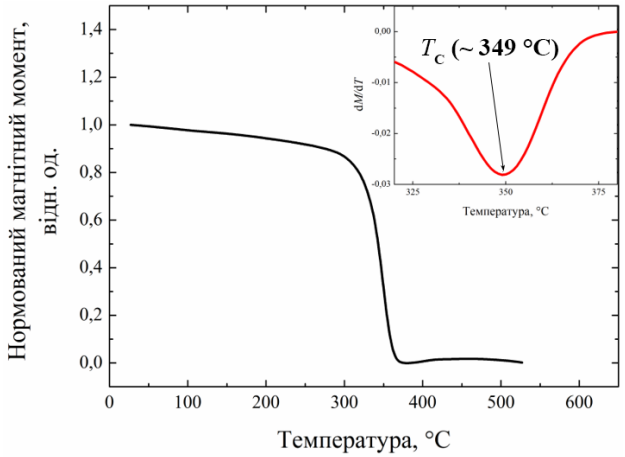



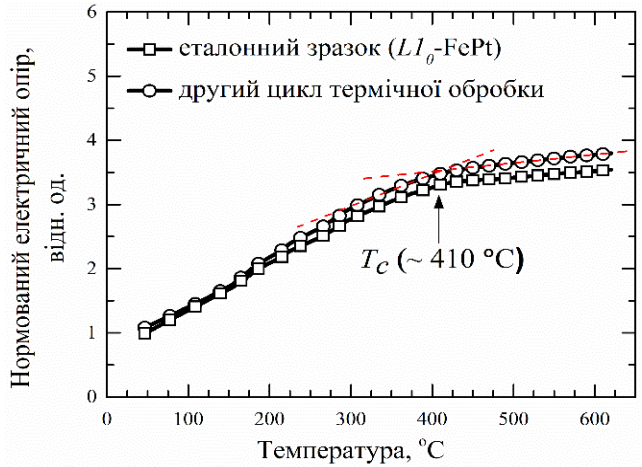
**Висока спорідненість Tb до кисню (-972кДж/моль) термодинамічно обумовлює його дифузію в напрямку зовнішньої поверхні з формуванням шару оксидної фази $TbO_2$**

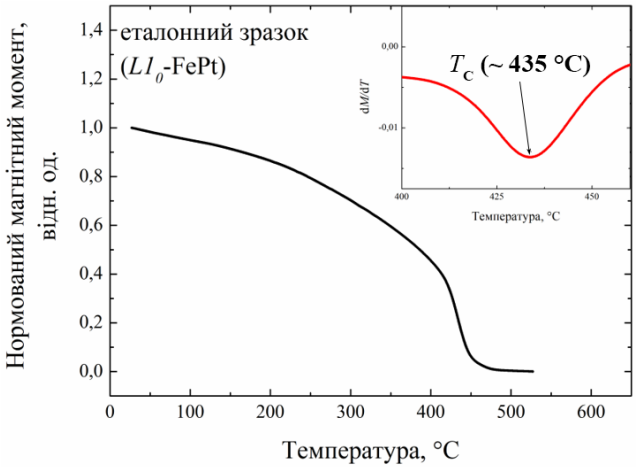
# Кореляція електрорезистивних, магнітних та структурно-фазових характеристик плівкових систем з наношарами Fe та Pt

## Температурні залежності електроопору та намагніченості



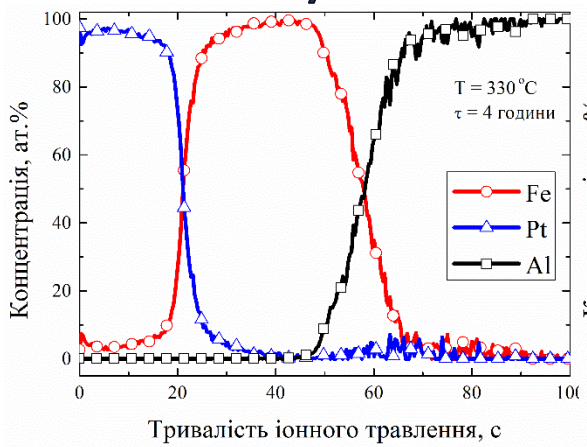




**Характерні ділянки на залежності $R(T)$ відповідають різним структурно-фазовим і магнітним станам → можливість визначати температурні інтервали фазової стабільності і практично-важливі магнітні характеристики!**

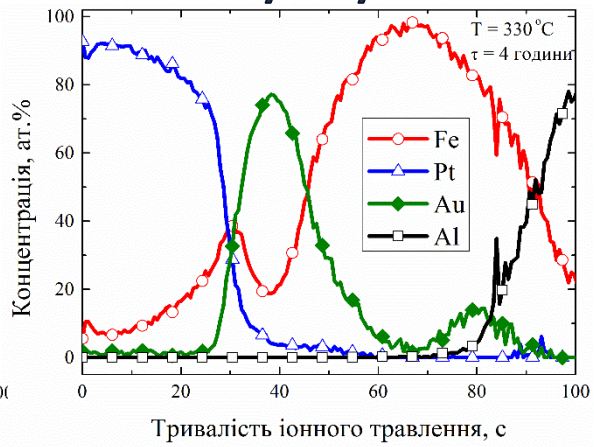
# Кінетика масопереносу компонентів у системах Pt(15 нм)/Fe(15 нм) та Pt(15 нм)/Au(10 нм)/Fe(15 нм)

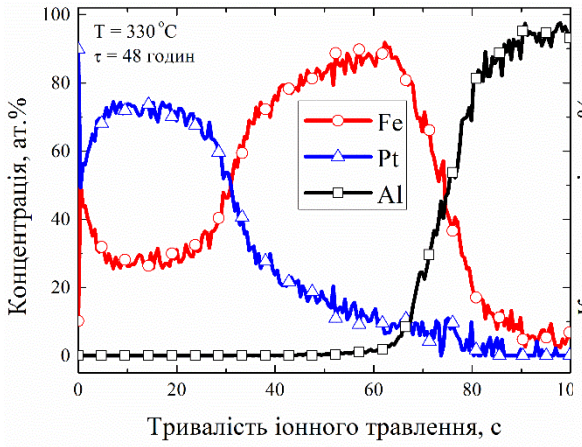
## Ізотермічний відпал *T* = 330 °C, τ = 0,5 – 62 години

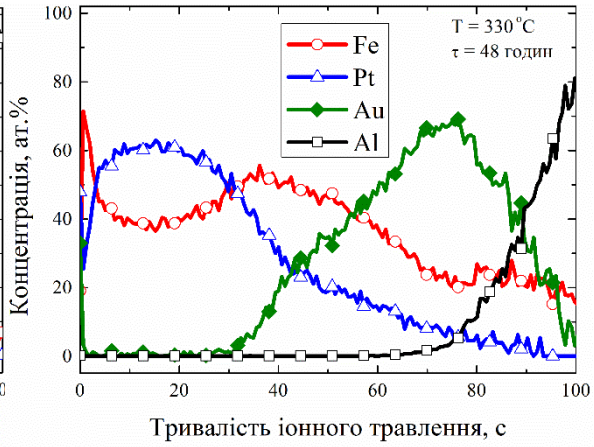
**Pt/Fe**

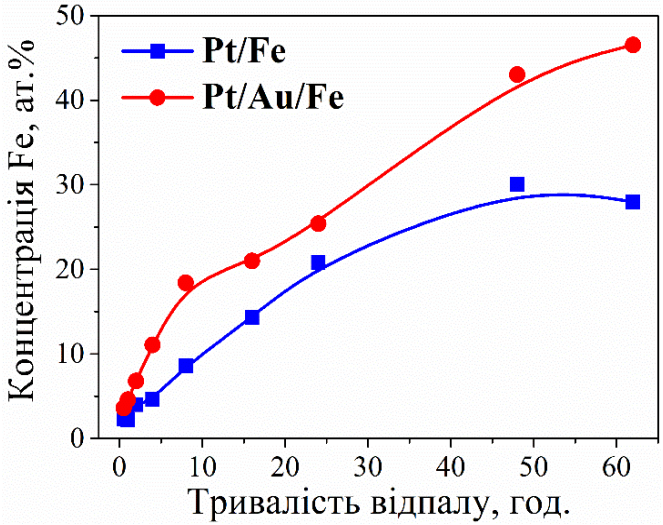



**Pt/Au/Fe**



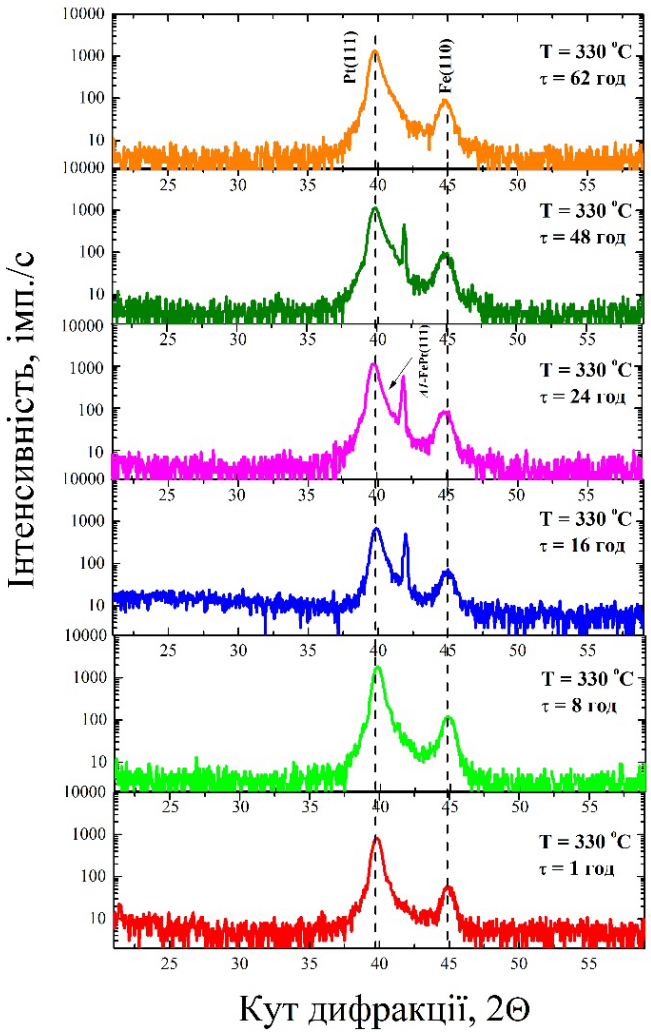




**Ефект прискорення масопереносу атомів Pt та Fe за зернограничним механізмом внаслідок додавання шару Au до системи Pt/Fe**

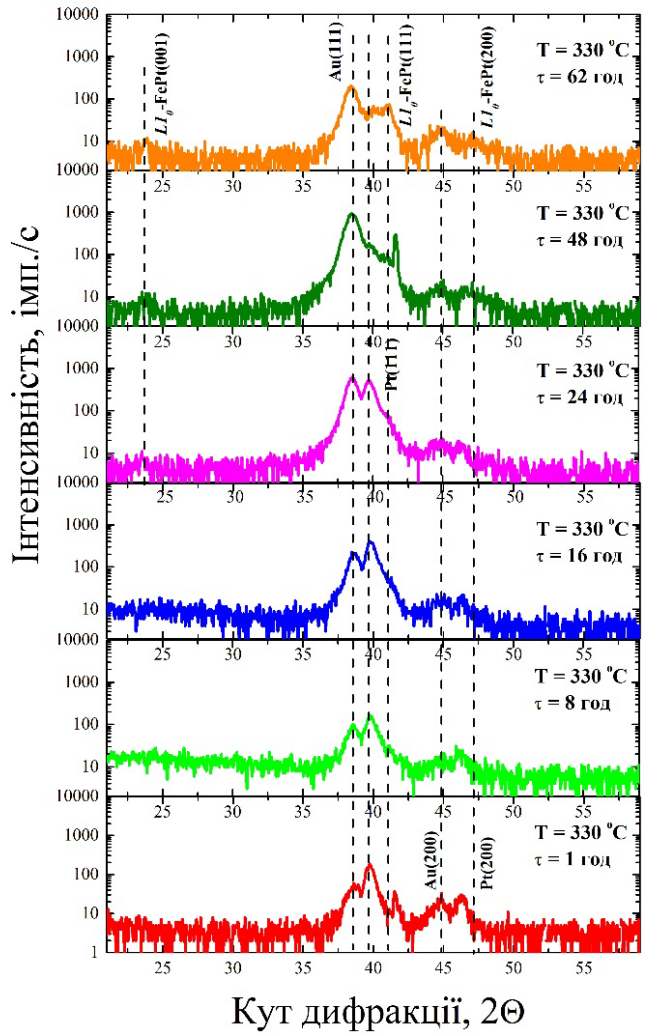
# Закономірності змін фазового складу систем Pt(15 нм)/Fe(15 нм) та Pt(15 нм)/Au(10 нм)/Fe(15 нм)

## ізотермічний відпал $T$ = 330 °C, τ = 0,5 – 62 години

**Pt/Fe**




**Pt/Au/Fe**

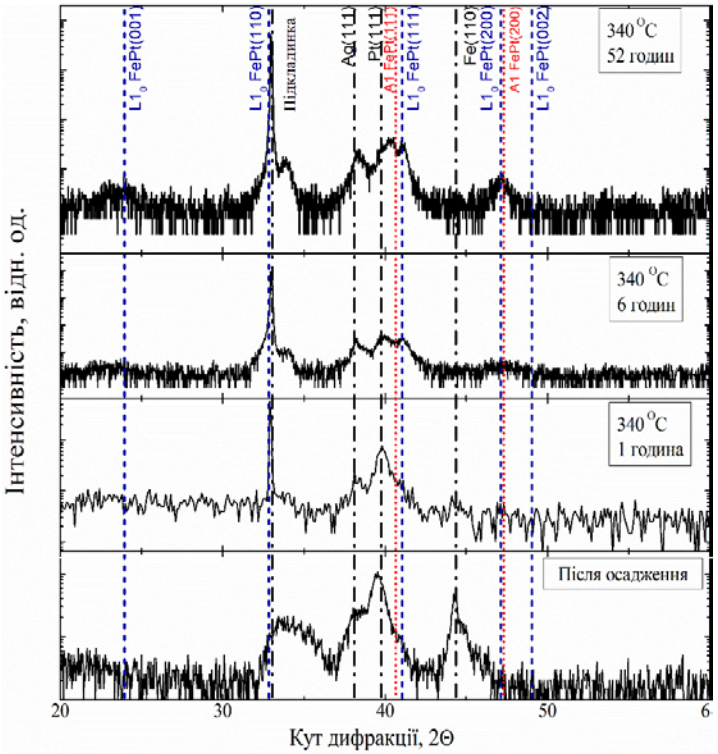


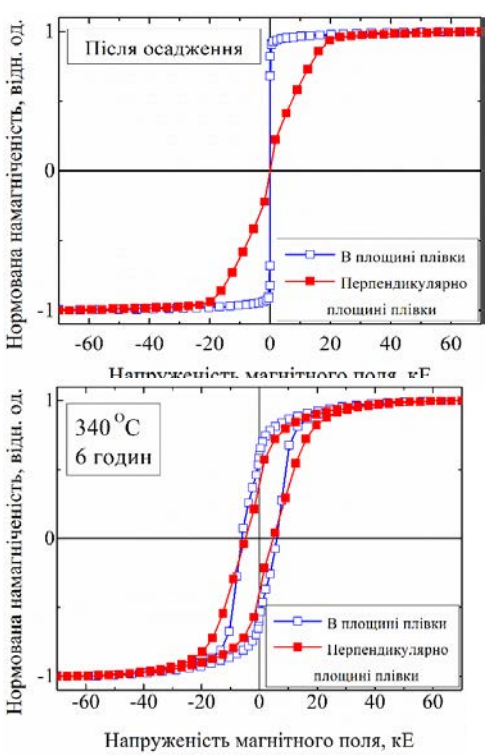

**Ініціалізація процесу впорядкування внаслідок додавання шару Au**

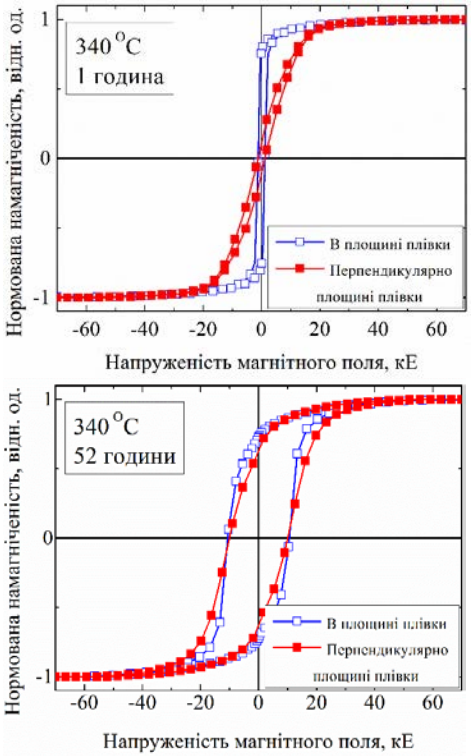
**Низькотемпературне ($T$ ~ 0,2 $T_{пл}$) формування магнітно-твердої фази $L1_0$-FePt**

# Закономірності змін фазового складу і магнітних властивостей системи Fe(15 нм)/Ag(10 нм)/Pt(15 нм)

## Ізотермічний відпал $T$ = 340 °C, τ = 1 – 52 години

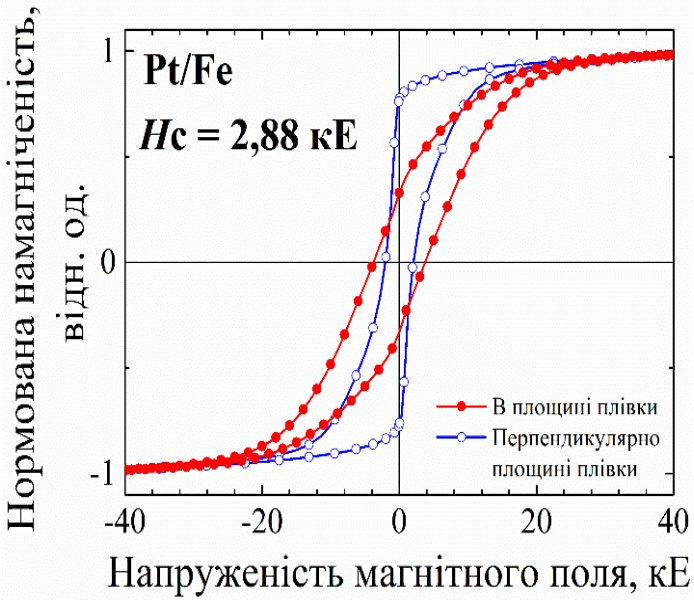


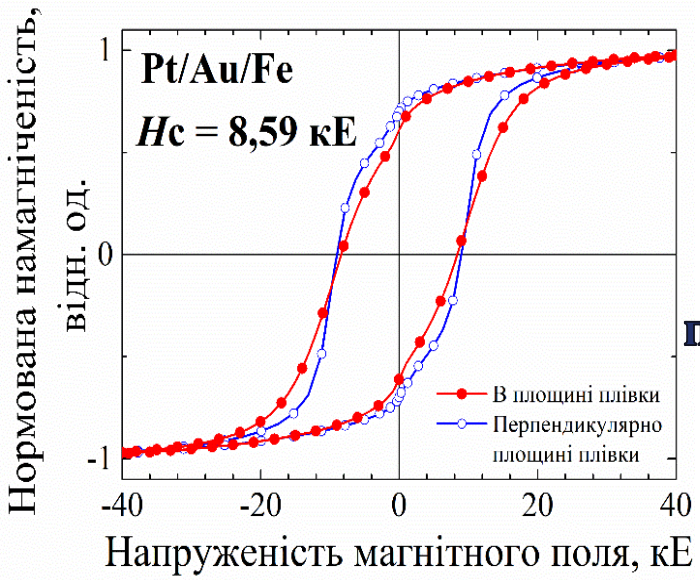




**Збільшення *Hc* до 10 кЕ після додавання проміжного шару Ag до системи Fe/Pt**

# Вплив додаткового проміжного шару Au на коерцитивну силу $T$ = 330 °C, τ = 62 години




**Збільшення $H_c$ до 3 разів після додавання проміжного шару Au до системи Pt/Fe**

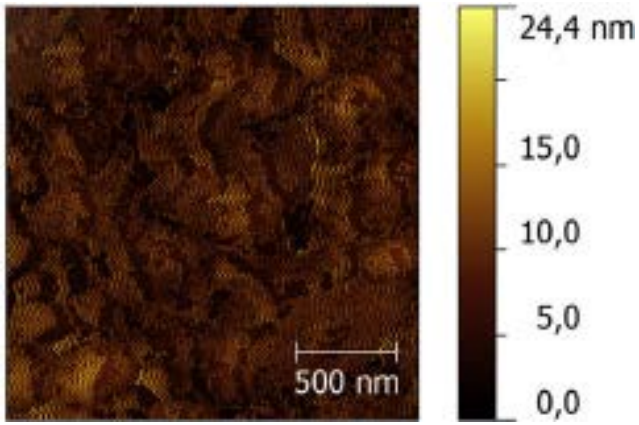
## Коерцитивна сила систем Pt/Fe, Pt/Au/Fe, Fe/Ag/Pt і $Fe_{50}Pt_{50}$/Ag після низько- та високотемпературного термічного впливу

| Система | 330 °C, 62 год. | 340 °C, 1 год. | 340 °C, 6 год. | 340 °C, 52 год. | 800 °C, 30 с | 900 °C, 30 с |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Pt/Fe | 2,88 кЕ | | | | | |
| Pt/Au/Fe | 8,58 кЕ | | | | | |
| Fe/Ag/Pt | | 1,5 кЕ | 5,8 кЕ | 10,4 кЕ | 11 кЕ | 11 кЕ |
| $Fe_{50}Pt_{50}$/Ag | | | | | 11,8 кЕ | 24 кЕ |

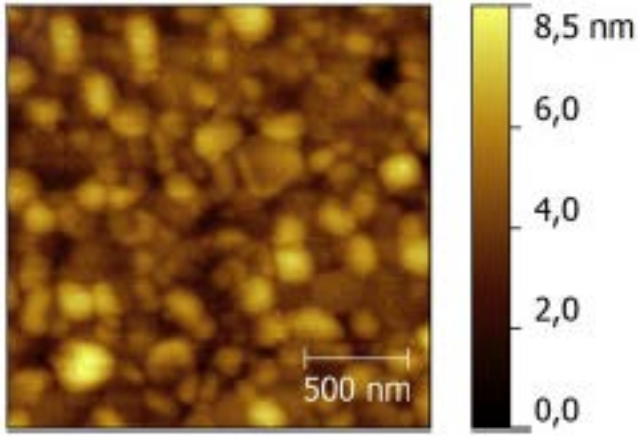
# Термічна стабілізація шорсткості поверхні періодичної системи $[FePt(15\ нм)/Au(10\ нм)/FePt(15\ нм)]_{2x}$ (додавання водню до атмосфери термічної обробки)

## Результати атомно-силової мікроскопії

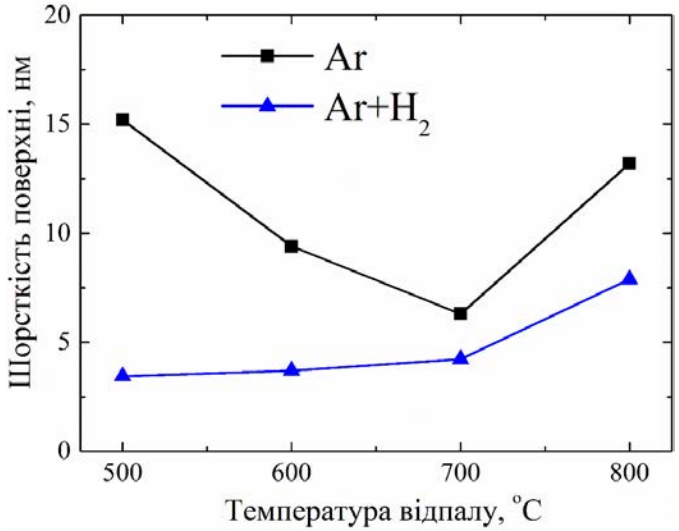
800 °C Ar




800 °C Ar+$H_2$



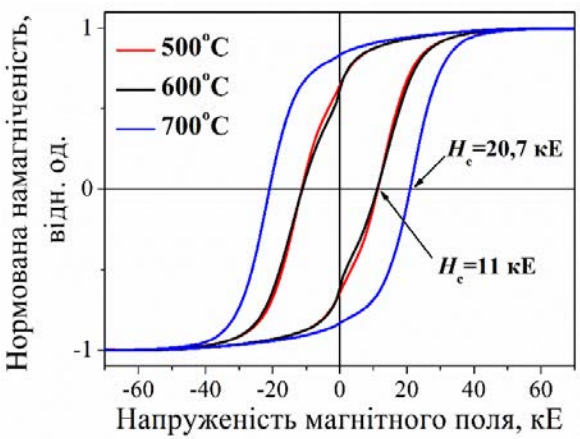

## Залежність шорсткості поверхні від температури відпалу в різних атмосферах



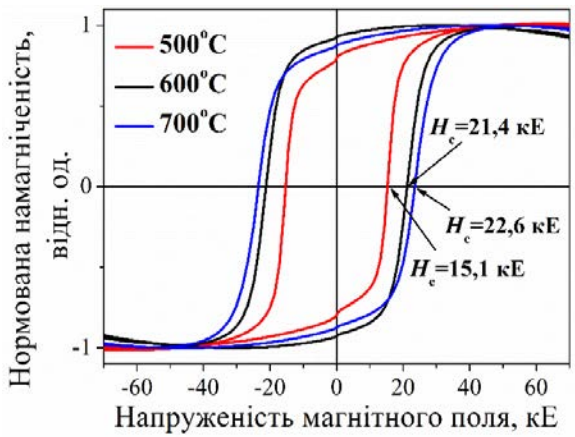

**Дифузія водню та його проникнення до кристалічної гратки фази $L1_0$-FePt з формуванням твердого розчину підвищують температуру рекристалізації**

# Коерцитивна сила плівкового сплаву FePt і періодичної системи $[FePt/Au/FePt]_{2x}$ після відпалу у різних атмосферах

Ar

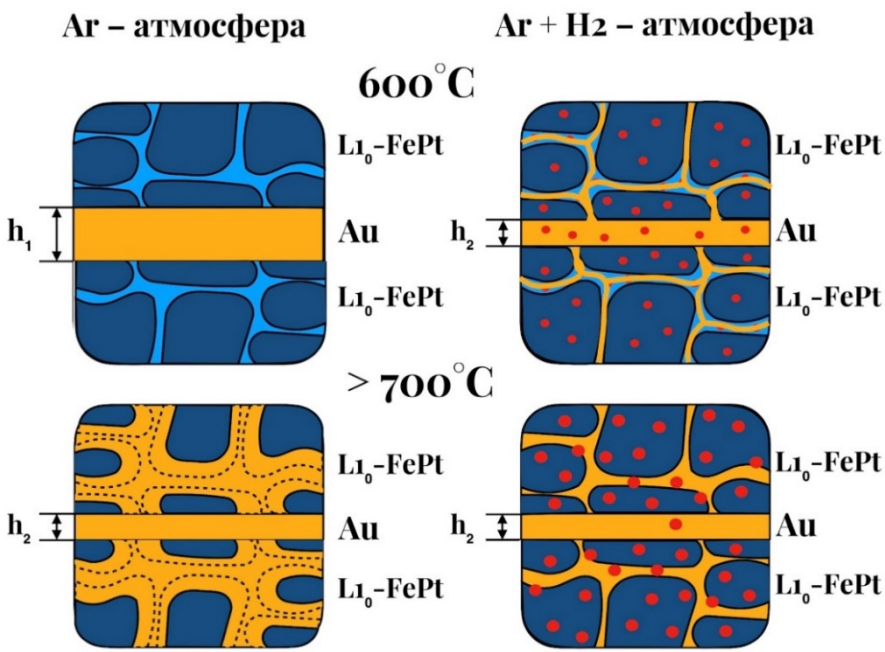



Ar+$H_2$




| Система | Атмосфера відпалу | $T$, °C | $H_C$, кЕ | | $H_C$, кЕ |
|---|---|---|---|---|---|
| FePt | Ar | 500 | 2 | $[FePt/Au/FePt]_{2x}$ | 11,1 |
| | | 600 | 19 | | 11,2 |
| | | 700 | 18 | | 20,7 |
| | Ar+$H_2$ | 500 | 12 | | 15,1 |
| | | 600 | 13,7 | | 21,4 |
| | | 700 | 15,2 | | 22,6 |

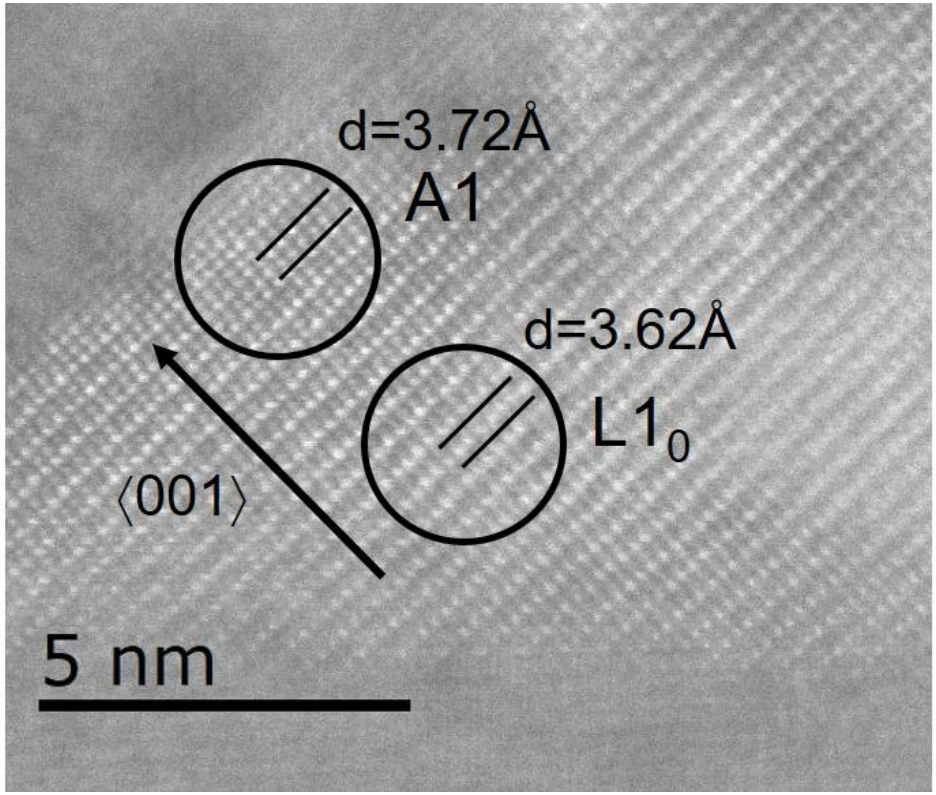
# Модельні уявлення щодо комбінованого впливу атмосфери термічного впливу та додаткових шарів Au

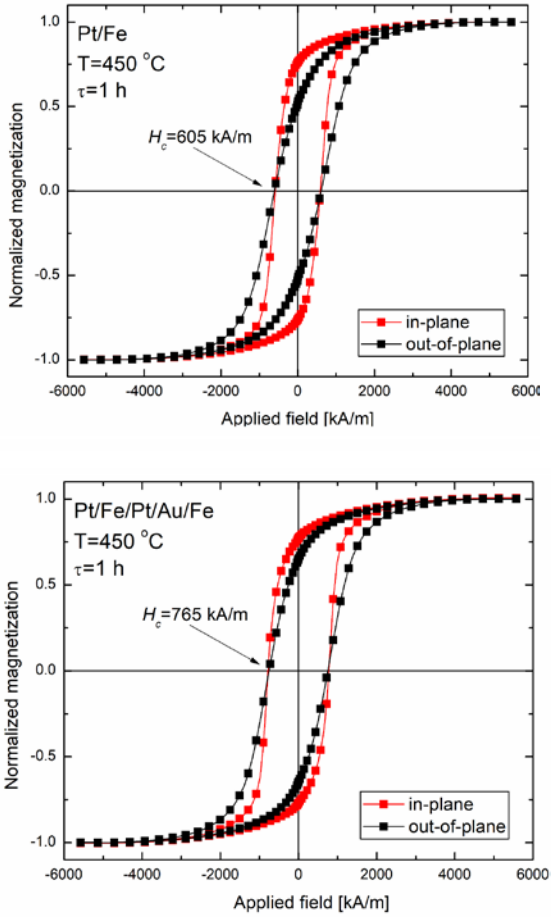



Збільшення $H_c$ внаслідок:

- додавання $H_2$ до нейтральної атмосфери відпалу
- додавання проміжних шарів Au
- збільшення кількості шарів основних і легуючих елементів

# Формування магнітно-градієнтних наноструктур






**Співіснування магнітно-м'якої і магнітно-твердої фаз в одному об'ємі плівкового матеріалу**

# Наукова новизна

1) Вперше встановлено ефект прискорення процесу формування магнітно-твердої фази $L1_0$-FePt в області температур (0,3 – 0,5) $T_{пл}$ внаслідок додавання проміжного шару Au до нанорозмірної системи Pt/Fe, що дозволило досягти втричі більшого значення коерцитивної сили плівкового матеріалу.

2) Вперше на прикладі плівкових систем Pt(15 нм)/Fe(15 нм) та $Fe_{50}Pt_{50}$(30 нм) на основі встановленої кореляції електрорезистивних, магнітних та структурно-фазових характеристик визначено інтервали термічної стабільності технічно-актуальної фази $L1_0$-FePt та температуру, до якої зберігається її феромагнітне впорядкування

3) Вперше виявлено, що закономірності фазоутворення та напрямок дифузійного потоку атомів *Me* у нанорозмірних системах Pt/*Me*/Fe (Me – Mn, Tb, Au) за температур до 0,5 $T_{пл}$ термодинамічно визначаються співвідношенням ентальпій формування оксидів проміжного *Me* та Fe: метал проміжного шару з високою спорідненістю до кисню сегрегує на зовнішній поверхні, метал з низькою спорідненістю до кисню – біля підкладинки.

4) Вперше доведено можливість низькотемпературного ($T \sim 0{,}2\ T_{пл}$) формування магнітно-твердої фази $L1_0$-FePt у нанорозмірних плівкових системах Pt/Fe та Pt/*Me*/Fe в процесі ізотермічного відпалу впродовж (24 – 62) годин та збільшення коерцитивної сили до 4 разів внаслідок додавання до системи Pt/Fe проміжних наношарів Au, Ag, яке забезпечує прискорення масопереносу за зернограничним механізмом та ізоляцію феромагнітних зерен немагнітним компонентом.

5) Вперше показано, що особливості масопереносу в кінетичному режимі типу *C* ($T \sim 0{,}2\ T_{пл}$) для нанорозмірних систем Pt/*Me*/Fe (*Me* – Ag, Au) визначаються типом взаємодії матеріалу проміжного шару з основними компонентами: утворення нестабільного інтерметаліду $Ag_xPt_{1-x}$ за механізмом реакційної дифузії, індукованої рухом границь зерен, уповільнює процеси «холодної» гомогенізації хімічного складу і формування впорядкованої магнітно-твердої фази $L1_0$-FePt в системі з додатковим шаром Ag порівняно із системою з додатковим шаром Au, для якої характерна обмежена взаємна розчинність компонентів без наявності інтерметалідних сполук.

6) Вперше виявлено, що збільшення кількості шарів феромагнітного сплаву FePt, додавання наношарів немагнітного легуючого елементу Au та зміна атмосфери термічної обробки з нейтральної на водневмісну обумовлюють зменшення на 100 °C температури початку розвитку дифузійних процесів у періодичній системі $[FePt/Au/FePt]_{2x}$ за зернограничним механізмом і прискорюють формування магнітно-твердої фази $L1_0$-FePt, що забезпечує зростання коерцитивної сили вдвічі за температур відпалу порядку 0,4 $T_{пл}$.

# Практична значимість

Отримані в даній роботі результати є науковою основою створення новітніх феромагнітних впорядкованих наноматеріалів на основі FePt з унікальним комплексом магнітних і експлуатаційних властивостей (коерцитивна сила, намагніченість насичення, температура Кюрі, корозійна стійкість), використання яких в якості робочих плівкових елементів приладів наноелектроніки і спінтроніки дозволить досягти суттєвого підвищення функціональних характеристик даних приладів (ємність зберігання інформації, щільність інтеграції функціональних елементів тощо) та зменшити енерговитрати.

Зацікавленість у впровадженні результатів даного дослідження виявили провідні вітчизняні компанії, що провадять діяльність у сфері мікро- та наноелектроніки – ТОВ «Гресем Інновейшен» та ТОВ «Квазар – Мікро ДІСТІ».
Результати роботи захищено 6-ма патентами на корисні моделі.

НАУКОВО-ІНВЕСТИЦІЙНЕ ПІДПРИЄМСТВО
ТОВ «ГРЕСЕМ ІНОВЕЙШН»

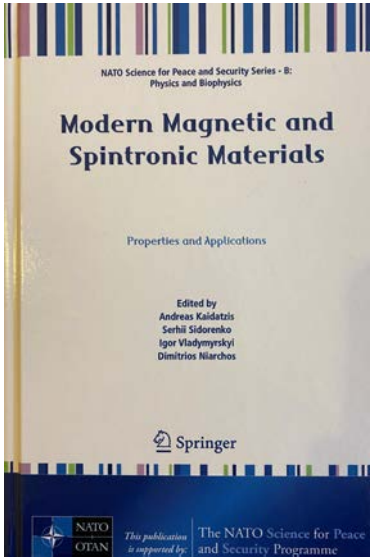
ЛИСТ-РЕКОМЕНДАЦІЯ
на роботу І.А. Владимирського
«Наноразмірні плівкові структури з магнітними і немагнітними шарами для сучасних технологій спінтроніки та наноелектроніки»,
представлена на здобуття премії Президента України для молодих вчених 2022 року

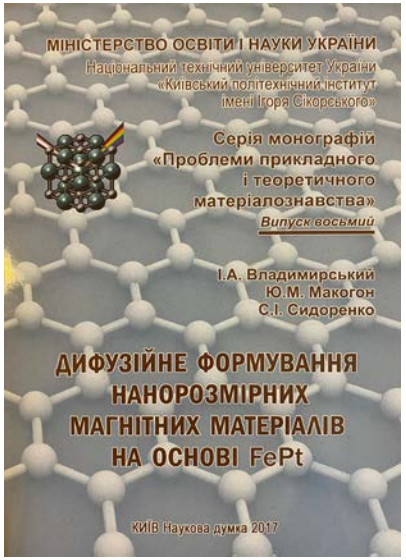
ТОВАРИСТВО З ОБМЕЖЕНОЮ ВІДПОВІДАЛЬНІСТЮ «КМ ДІСТІ»

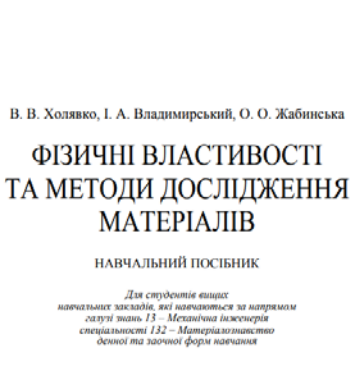
Комітет з державних премій України в галузі науки і техніки

Головний інженер ТОВ «КМ ДІСТІ» Володимир КАРАУЛЬЩУК

**Результати роботи опубліковано в 2 монографіях (видавництва Наукова думка, Springer), 24 статтях в журналах, що індексуються базою Scopus (з них 20 – англійською мовою у закордонних журналах), 1 навчальному посібнику**






**Владимирський І.А. (Vladymyrskyi I.A.)**

**Scopus ID 55498048400**

**H index - 7**

**Загальна кількість посилань - 156**