

## METALLIC SURFACES AND FILMS

PACS numbers: 68.35.Ct, 68.35.Dv, 68.35.Fx, 68.55.-a, 75.50.Ss, 75.50.Vv

### Термічно-індуковані фазові перетворення і магнітні властивості нанорозмірних плівкових композицій Pt/Fe і Pt/Au/Fe

І. А. Владимирський, Я. Д. Мамчур, А. П. Бурмак, С. М. Волошко

*Національний технічний університет України*  
*«Київський політехнічний інститут імені Ігоря Сікорського»,*  
*просп. Перемоги, 37,*  
*03056 Київ, Україна*

Досліджено закономірності перебігу дифузійних процесів і контрольованого ними формування фазового складу в двошаровій плівковій системі Pt(15 нм)/Fe(15 нм) до та після додавання проміжного шару Au(10 нм) внаслідок термічної обробки у вакуумі в температурному інтервалі 215–550°C. Проаналізовано вплив температури відпалу і наявності додаткового шару Au на магнітні властивості плівкового матеріалу. Виявлено ефект прискорення дифузійних процесів і збільшення коерцитивної сили до 20,9 кЕ плівкових композицій Pt/Au/Fe в порівнянні з двошаровими композиціями Pt/Fe.

**Ключові слова:** коерцитивна сила, фаза  $L1_0$ -FePt, дифузія, тонкі плівки.

In this study the regularities of diffusion processes and structural phase transitions in Pt(15 nm)/Fe(15 nm) layered stacks with and without Au intermediate layer during annealing in vacuum in the temperature range of 215–550°C are investigated. The influence of both annealing temperature and the presence of intermediate layer on magnetic properties of the films is analyzed. As found, the diffusion processes in Pt/Au/Fe stack are significantly accelerated compared to Pt/Fe film leading to drastic enhancement of

Corresponding author: Igor Anatoliyovych Vladymyrskyi  
E-mail: i.vladymyrskyi@gmail.com

*National Technical University of Ukraine 'Igor Sikorsky Kyiv Polytechnic Institute',*  
*37 Peremohy Ave., UA-03056 Kyiv, Ukraine*

Citation: I. A. Vladymyrskyi, Y. D. Mamchur, A. P. Burmak, and S. M. Voloshko, Thermally-Induced Phase Transitions and Magnetic Properties of Pt/Fe and Pt/Au/Fe Layered Stacks, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **43**, No. 5: 593–611 (2021) (in Ukrainian), DOI: [10.15407/mfint.43.05.0593](https://doi.org/10.15407/mfint.43.05.0593).

the coercivity up to 20.9 kOe.

**Key words:** coercivity,  $L1_0$ -FePt phase, diffusion, thin films.

(Отримано 10 березня 2021 р.)

## 1. ВСТУП

Термічно-індуковане формування заданих структурно-фазових станів у нанорозмірних плівкових матеріалах завдяки активації дифузійних процесів є необхідною умовою забезпечення високих функціональних властивостей. При цьому потрібно приймати до уваги, що перебіг фазових перетворень у багатошарових композиціях зазвичай не відповідає тому, що передбачається діаграмою стану для масивних матеріалів у зв'язку із суттєвими відхиленнями від термодинамічної рівноваги. За правилом Оствальда у нанорозмірних системах перехід до стану термодинамічної рівноваги відбувається в декілька етапів, кожен з яких супроводжується зменшенням вільної енергії, і, відповідно, можливим формуванням нових фаз, в тому числі термодинамічно нестабільних, але кінетично стійких [1].

Істотний вплив на цей процес чинять не тільки фізико-технологічні параметри термічної обробки — температура [2], тривалість [3], швидкості нагріву та охолодження плівкової композиції [4], склад атмосфери [5, 6], а також порядок розташування шарів [7], їхня кількість та товщина [8].

Усі зазначені особливості у повній мірі відносяться до феромагнітних плівкових матеріалів на основі впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt. Вони характеризуються високими значеннями коерцитивної сили, намагніченості насичення, енергії магнітно-кристалічної анізотропії, температури Кюрі, а також підвищеною корозійною стійкістю [9]. Саме такий комплекс властивостей забезпечує можливість їх використання в якості середовища магнітного запису інформації [10, 11], плівкових постійних магнітів, а також функціональних елементів приладів спінтроники [12].

Впорядкована фаза  $L1_0$ -FePt може бути сформована різними шляхами, одним з яких є термічна обробка вихідних двошарових плівкових композицій Pt/Fe [13]. При цьому на початкових етапах відпалу в результаті дифузійної атомної взаємодії Fe і Pt відбувається формування неупорядкованої фази A1-FePt, яка є магнітно-м'якою, проявляє ізотропні магнітні властивості і не представляє особливого інтересу з точки зору прикладних застосувань. За більш високих температур формується потрібна фаза  $L1_0$ -FePt, але з технологічної точки зору бажаним є як зниження температури і тривалості відпалу для остаточного впорядкування фази  $L1_0$ -FePt, так і

забезпечення стабільності її структурних характеристик в процесі експлуатації.

Температуру впорядкування плівкових композицій Pt/Fe можна контролювано змінювати додаванням проміжних шарів різних легуючих елементів, наприклад тих, які здатні до формування в процесі термічної обробки проміжних метастабільних фаз (Tb [14, 15]), чи трикомпонентних впорядкованих фаз  $L1_0$ -MeFePt (де Me—Mn, Cu [16–18]), або тих, які можуть і не взаємодіяти з іншими елементами (Au, Ag [19, 20]). Легування плівок на основі FePt також чинить значний вплив на їхні магнітні властивості.

Однією з додаткових рушійних сил прискорення дифузійних процесів під час додавання проміжних шарів до нанорозмірних плівкових композицій вважаються механічні напруження, які виникають на внутрішніх границях поділу внаслідок різниці параметрів кристалічної будови і температурних коефіцієнтів лінійного розширення матеріалів шарів [21]. Вплив проміжних шарів легуючих елементів на швидкість дифузії і впорядкування в плівкових композиціях на основі Fe/Pt обговорюється, зокрема, у [22, 23].

В даній роботі за допомогою пошарового хімічного аналізу, рентгеноструктурних досліджень і SQUID магнітометрії проведено порівняльний аналіз дифузійних процесів, особливостей структурно-фазових перетворень і магнітних властивостей нанорозмірних композицій Pt(15 нм)/Fe(15 нм) і Pt(15 нм)/Au(10 нм)/Fe(15 нм) у температурному інтервалі 215°C–550°C з метою виявлення впливу проміжного шару Au на формування впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt.

## 2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Нанорозмірні плівкові композиції Pt(15 нм)/Fe(15 нм) і Pt(15 нм)/Au(10 нм)/Fe(15 нм) отримано методом магнетронного осадження за кімнатної температури на підкладинки термічно-окисненого монокристалічного кремнію  $\text{SiO}_2(100 \text{ нм})/\text{Si}(001)$ . Використані мішені Pt, Fe і Au мали чистоту, вищу за 99,95%. Номінальну товщину шарів плівкових композицій визначено, зважаючи на калібровані швидкості розпорошення кожної мішені. Робочий тиск Ar в процесі осадження шарів складав 0,35 Па.

Плівкові зразки піддано відпалу у вакуумі  $10^{-3}$  Па в режимі «нагрів–охолодження» в інтервалі температур 215–550°C. Середня швидкість нагріву складала  $0,5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ . Температура плівкових зразків під час обробки контролювалась за допомогою термopар, підведеної безпосередньо до їхньої поверхні. Після досягнення кінцевої температури відпалу зразок вилучався із зони обробки з метою збільшення швидкості охолодження і зменшення його впливу на розвиток структурно-фазових перетворень.

Фазовий склад плівкових композицій у вихідному стані і після

відпалу за різних температур досліджено методом рентгеноструктурного фазового аналізу за допомогою дифрактометра Rigaku Ultima IV у мідному випромінюванні ( $\lambda_{\text{CuK}\alpha} = 0,15418$  нм). Застосовано геометрію зйомки за Бреггом–Брентано. Умови проведення досліджень: інтервал кутів сканування  $2\theta = 20^\circ\text{--}60^\circ$ , крок зйомки —  $0,04^\circ$ , час витримки в точці — 2 с. В процесі дослідження зразок обертався навколо своєї осі зі швидкістю 30 об./хв. Аналіз отриманих рентгенівських спектрів та проведення якісного фазового аналізу здійснено з використанням програмного забезпечення PDXL, міжнародної бази даних дифракції ICDD (PDF-2) та відкритої бази кристалографічних даних COD.

Перерозподіл хімічних елементів за товщиною плівкових композицій внаслідок перебігу термічно-індукованих дифузійних процесів визначався за допомогою методу мас-спектрометрії вторинних нейтральних частинок на приладі SPECS INA-X. Плазма Ar слугувала як джерелом первинних йонів, так і середовищем постйонізації розпорошених нейтральних атомів. Концентрація елементів визначалась, зважаючи на її лінійну залежність від інтенсивності виходу вторинних нейтральних частинок.

Петлі магнітного гістерезису досліджуваних плівкових зразків отримано методом SQUID магнітометрії з використанням приладу MPMS3 (LOT-QuantumDesign GmbH). Зовнішнє магнітне поле напруженістю до 70 кЕ прикладалось у напрямку, перпендикулярному до поверхні зразка.

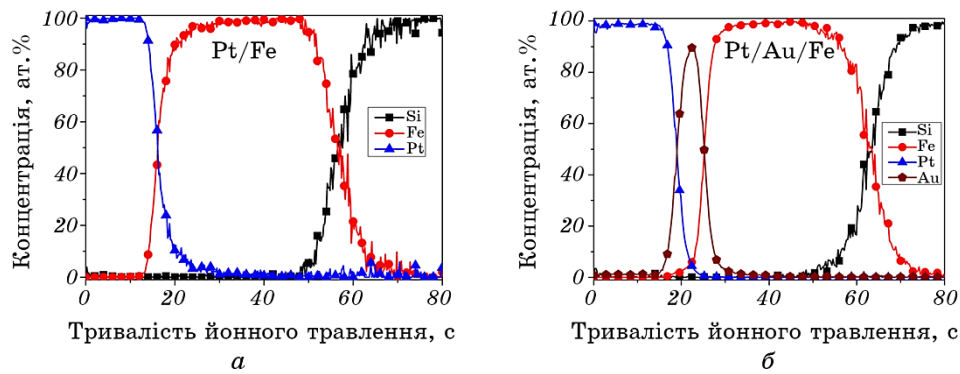
### 3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ

На рисунку 1 представлено результати пошарового хімічного аналізу плівкових композицій Pt/Fe і Pt/Au/Fe у вихідному стані після осадження. Зважаючи на наявні чіткі границі поділу між шарами, можна зробити висновок щодо відсутності дифузії між металевими компонентами композиції в процесі магнетронного осадження.

Результати рентгеноструктурного аналізу (рис. 2) підтверджують шарувату структуру досліджуваних зразків у вихідному стані, про що свідчить наявність на відповідних дифрактограмах рефлексів (111) від Pt і (110) від Fe, а також рефлексу (111) від Au на дифрактограмі композиції Pt/Au/Fe.

За даними SQUID магнітометрії у вихідному стані досліджуваним плівковим композиціям притаманні магнітно-м'які властивості (рис. 3). Зрозуміло, що в даному випадку основний внесок у намагніченість матеріалу надає шар Fe.

Термічна обробка супроводжується активацією дифузійних процесів за температури  $215^\circ\text{C}$ . При цьому у двошаровій композиції спостерігається інтенсивна дифузія атомів Fe до шару Pt із сегрегацією на зовнішній поверхні до 90 ат.% (рис. 4, а). В тришаровій

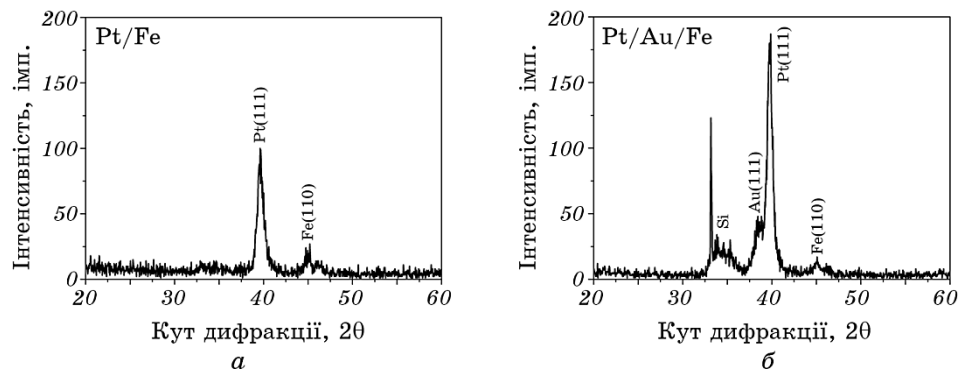


**Рис. 1.** Пошарові концентраційні розподіли компонентів плівкових композицій Pt/Fe (а) і Pt/Au/Fe (б) після осадження.

**Fig. 1.** Composition *versus* sputtering time profiles of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after deposition.

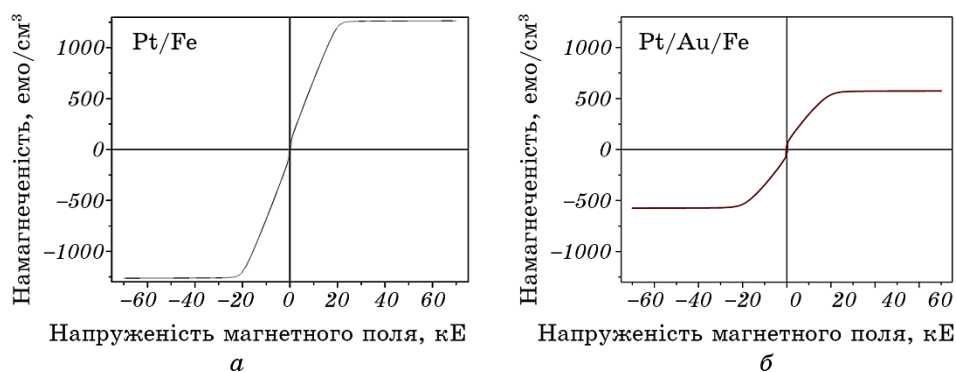
плівкової композиції (рис. 4, б) дифузія атомів Fe до шару Pt відбувається крізь додатковий шар Au із формуванням яскраво вираженого сегрегаційного прошарку (~40 ат.%) на вихідній границі поділу Pt/Au. Поверхнева сегрегація у даному випадку відсутня. Фіксується незначне взаємне проникнення Pt та Au, а також помітна сегрегація атомів Au (~15 ат.%) на границі поділу Fe/підкладинка. Дифузійне проникнення Fe до шару Pt на цьому етапі термічної обробки є більш інтенсивним у двошаровій композиції (до 40 ат.%) в порівнянні з композицією з додатковим шаром Au (10 ат.%).

Після відпалу за температури 215°C на дифрактограмах двошарової плівкової композиції (рис. 5, а) зникають рефлекси від окремих



**Рис. 2.** Результати рентгеноструктурного фазового аналізу плівкових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після осадження.

**Fig. 2.** XRD ( $\theta$ - $2\theta$ ) scans of Pt/Fe (a) and Pt /Au/Fe (b) films after deposition.

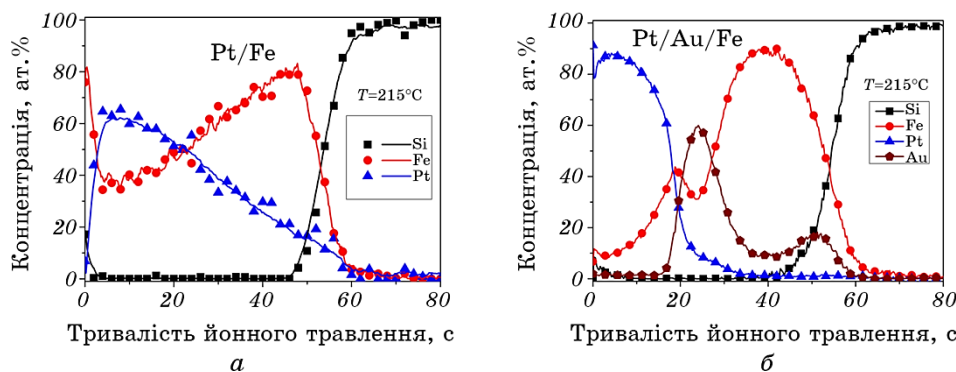


**Рис. 3.** Петлі магнітного гістерезису плівкових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після осадження.

**Fig. 3.** SQUID-VSM (M-H) hysteresis loops of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after deposition.

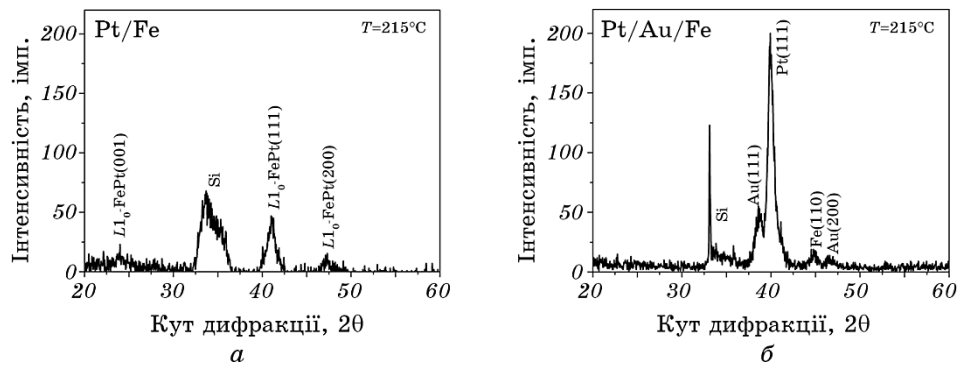
металів і з'являється рефлекс (111) від неупорядкованої фази A1-FePt. Також на дифрактограмі наявний малий за інтенсивністю надструктурний рефлекс (001) від фази  $L1_0$ -FePt, що є ознакою початку процесу впорядкування. На дифрактограмі плівкової композиції з додатковим шаром Au після аналогічної термічної обробки відсутні ознаки зміни фазового складу: спостерігаються ті самі рефлекси, що і після осадження. Кутові положення цих рефлексів також є незмінними. Єдиною помітною відмінністю є збільшення інтенсивності рефлексу Au (111).

Відпал за температури 215°C супроводжується суттєвим збіль-



**Рис. 4.** Пошарові концентраційні розподіли компонентів плівкових композицій Pt/Fe (а) і Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 215°C.

**Fig. 4.** Composition *versus* sputtering time profiles of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 215°C.

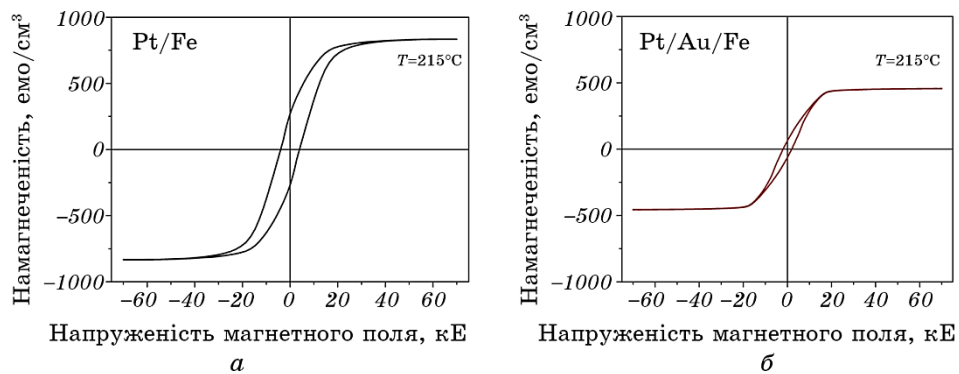


**Рис. 5.** Результати рентгеноструктурного фазового аналізу пліткових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 215°C.

**Fig. 5.** XRD ( $\theta$ - $2\theta$ ) scans of Pt/Fe (a) and Pt /Au/Fe (b) films after annealing at 215°C.

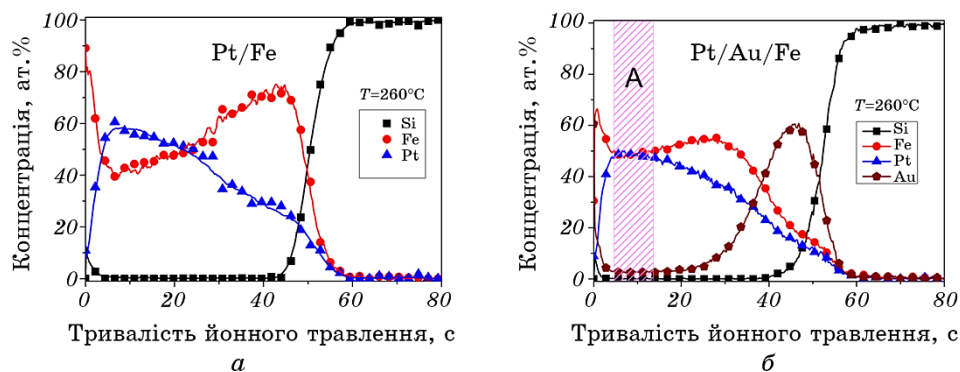
шенням коерцитивної сили досліджуваних композицій: до 4 кЕ для випадку двошарової композиції і до 2 кЕ для випадку композиції з додатковим шаром Au (рис. 6) порівняно із вихідним станом (0,27 кЕ). Ці результати добре узгоджуються з даними рентгеноструктурного фазового аналізу — часткове формування впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt в плітковій композиції Pt/Fe обумовлює більший рівень коерцитивної сили.

З підвищенням температури термічної обробки до 260°C у двошаровій композиції не спостерігається помітних змін концентраційних розподілів Fe і Pt за товщиною (рис. 7, а). Натомість, в



**Рис. 6.** Петлі магнітного гістерезису пліткових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 215°C.

**Fig. 6.** SQUID-VSM (M-H) hysteresis loops of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 215°C.

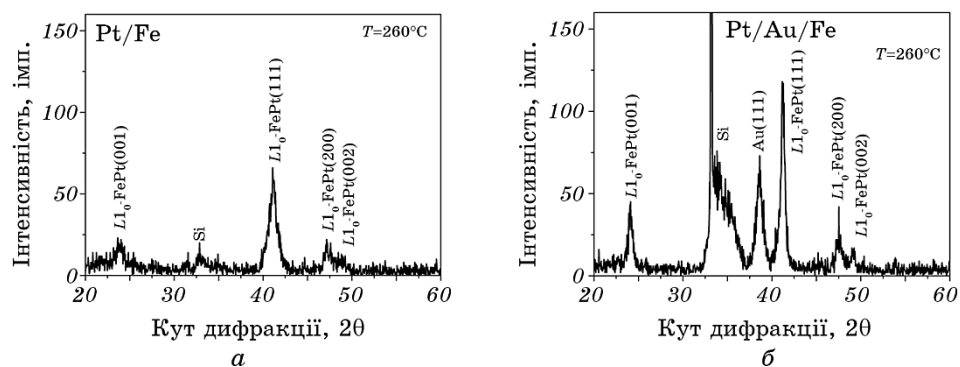


**Рис. 7.** Пошарові концентраційні розподіли компонентів плівкових композицій Pt/Fe (а) і Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 260°C.

**Fig. 7.** Composition *versus* sputtering time profiles of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 260°C.

композиції з додатковим шаром Au після даної обробки спостерігається інтенсивне проникнення Fe до шару Pt з досягненням концентрації 50 ат.%. Тобто додавання шару Au прискорює дифузію атомів Fe до шару Pt починаючи з температури 260°C, внаслідок чого шар Au залишається в області, що межує з підкладкою (рис. 7, б). Процес сегрегації Fe на зовнішній поверхні гальмується оскільки відбувається конкурентний процес поверхневої сегрегації Au (до 30 ат.%).

Процес часткового впорядкування за температури 260°C кристалічної будови двошарової плівкової композиції Pt/Fe та тришарової



**Рис. 8.** Результати рентгеноструктурного фазового аналізу плівкових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 260°C.

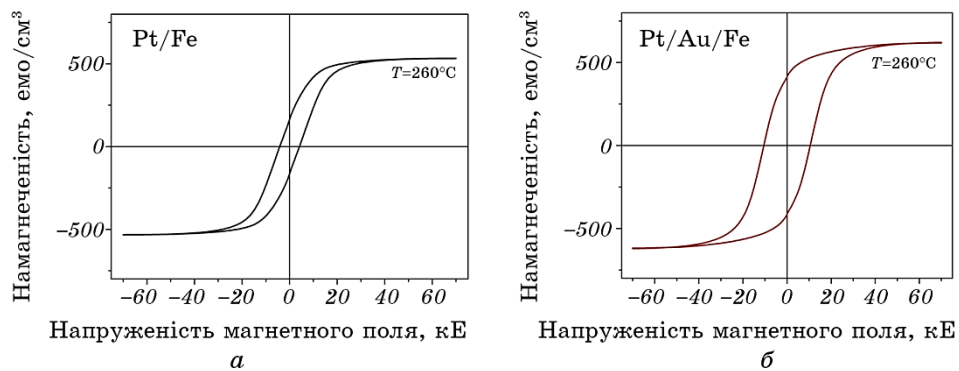
**Fig. 8.** XRD ( $\theta$ - $2\theta$ ) scans of Pt/Fe (a) and Pt /Au/Fe (b) films after annealing at 260°C.



композиції з додатковим шаром Au підтверджується наявністю на відповідних дифрактограмах чіткого надструктурного рефлексу (001) від впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt (рис. 8). Інтенсивність цього надструктурного рефлексу є вищою для випадку композиції з додатковим шаром Au, що цілком узгоджується з результатами поширеного аналізу: прискорена взаємна дифузія Fe та Pt обумовлює формування гомогенного прошарку (позначений як «А» на рис. 7, б) з концентрацією компонентів 50 ат. % та відповідно більшої кількості впорядкованої фази. У двошаровій системі повної гомогенізації не відбувається: у середньому концентрація складає 40 ат. % для Fe та 60 ат. % для Pt.

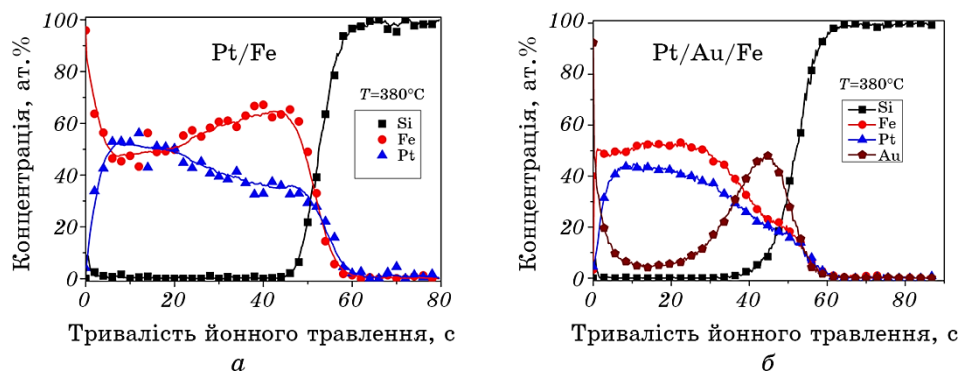
Початок процесу впорядкування плівкового матеріалу має наслідком позитивні зміни магнітних властивостей, які є магнітно-твердими, що підтверджує характер магнітного гістерезису після відпалу за температури 260°C (рис. 9). Однак, значення коерцитивної сили для двошарової системи суттєво не відрізняється від того, яке було досягнуте після попереднього етапу термічної обробки (215°C). Це свідчить, що підвищення температури на 45°C істотно не прискорює дифузійні процеси і кількість впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt залишається незначною (рис. 9, а). Натомість, за умови додавання шару Au, ситуація кардинально змінюється — з підвищенням температури відпалу до 260°C коерцитивна сила зростає до значення 10,8 кЕ (тобто у 40 разів), що пов'язано з прискоренням дифузії Fe до шару Pt та формуванням більшої кількості впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt з гомогенним складом (рис. 9, б).

З подальшим збільшенням температури до 380°C у двошаровій плівковій композиції Pt/Fe утворюється шар з еквіатомним концен-



**Рис. 9.** Петлі магнітного гістерезису плівкових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 260°C.

**Fig. 9.** SQUID-VSM (M-H) hysteresis loops of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 260°C.



**Рис. 10.** Пошарові концентраційні розподіли компонентів плівкових композицій Pt/Fe (а) і Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 380°C.

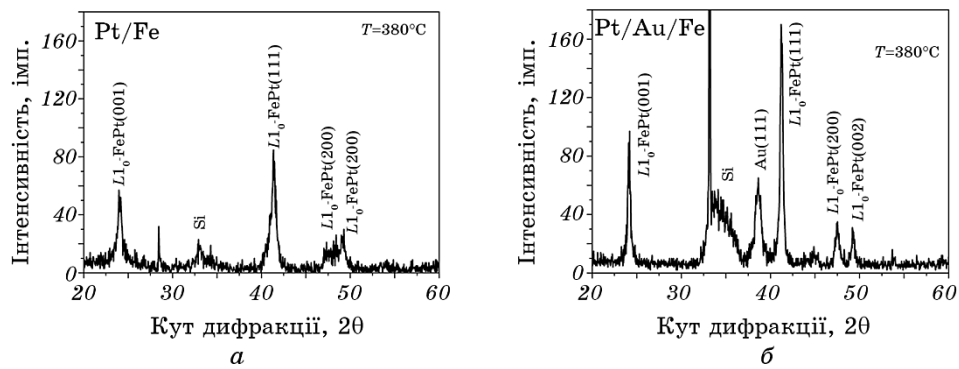
**Fig. 10.** Composition *versus* sputtering time profiles of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 380°C.

нтраційним співвідношенням Fe:Pt, але його товщина складає 1/3 від загальної товщини плівки (рис. 10, а). Товщина приповерхневого шару, в якому відбувається сегрегація Fe, збільшується до 2,5 нм. Розподіл Pt в шарі Fe залишається нерівномірним (концентрація Pt монотонно зменшується з 50 ат.% до 30 ат.%).

В композиції Pt/Au/Fe після відпалу за температури 380°C (рис. 10, б) наявний рівномірний розподіл Fe (50 ат.%) і Pt (40 ат.%) практично за всією товщиною шару FePt, що підтверджує ефект прискорення дифузії цих елементів за рахунок додавання проміжного шару Au. При цьому атоми Au, які переважно зосереджені в приграничній з підкладкою області, починають інтенсивно дифундувати крізь шар FePt в напрямку зовнішньої поверхні плівкової композиції з утворенням сегрегаційного прошарку на ній. Концентрація Au у цьому прошарку сягає 90 ат.%.

Рентгеноструктурні дослідження двошарової композиції Pt/Fe і композиції з додатковим шаром Au після підвищення температури відпалу до 380°C дозволили зафіксувати подальший перебіг процесу впорядкування їхньої кристалічної будови. Про це переконливо свідчать як підвищення інтенсивності надструктурного рефлексу (001) від впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt (рис. 11), так і розщеплення рефлексу (200) від неупорядкованої фази  $A1$ -FePt на рефлекси (200) і (002) фази  $L1_0$ -FePt (ознака тетрагонального викривлення кристалічної ґратниці). Для композиції з проміжним шаром Au ці зміни проявляються більш яскраво.

Коерцитивна сила двошарової композиції Pt/Fe після відпалу за температури 380°C набуває значення 4,47 кЕ (рис. 12, а). Однак коерцитивна сила композиції з додатковим шаром Au збільшується до

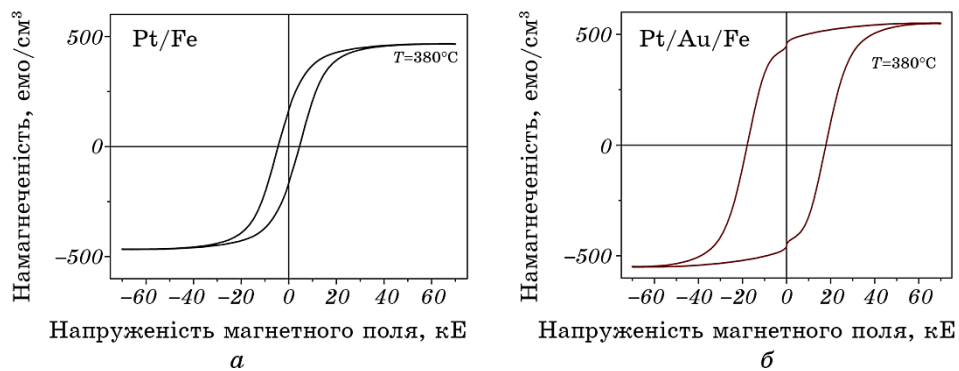


**Рис. 11.** Результати рентгеноструктурного фазового аналізу пліткових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 380°C.

**Fig. 11.** XRD ( $\theta$ – $2\theta$ ) scans of Pt/Fe (a) and Pt /Au/Fe (b) films after annealing at 380°C.

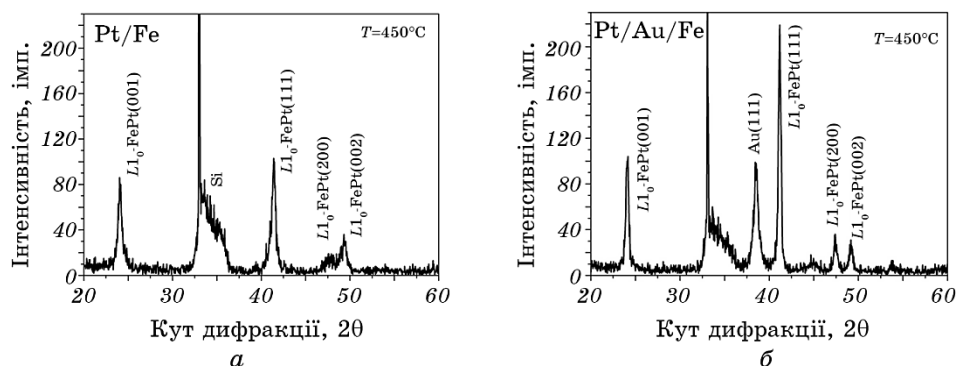
18 кЕ після обробки за цієї ж температури, тоді як після відпалу за температури 260°C її значення дорівнює 10,8 кЕ (рис. 12, б).

Таке суттєве покращення магнітно-твердих властивостей плівкового матеріалу є наслідком прискореної дифузії Fe до шару Pt і контрольованого нею процесу формування впорядкованої фази  $L1_0\text{-FePt}$ , ступінь впорядкування якої збільшується з підвищенням температури обробки. Також збільшенню коерцитивної сили може сприяти дифузія Au в напрямку вільної поверхні крізь шар FePt (за даними пошарового аналізу спостерігається рівномірний розподіл Au за товщиною шару FePt з концентрацією ~5 ат.%). За темпера-



**Рис. 12.** Петлі магнітного гістерезису пліткових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 380°C.

**Fig. 12.** SQUID-VSM (M-H) hysteresis loops of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 380°C.



**Рис. 13.** Результати рентгеноструктурного фазового аналізу пліткових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 450°C.

**Fig. 13.** XRD ( $\theta$ – $2\theta$ ) scans of Pt/Fe (a) and Pt /Au/Fe (b) films after annealing at 450°C.

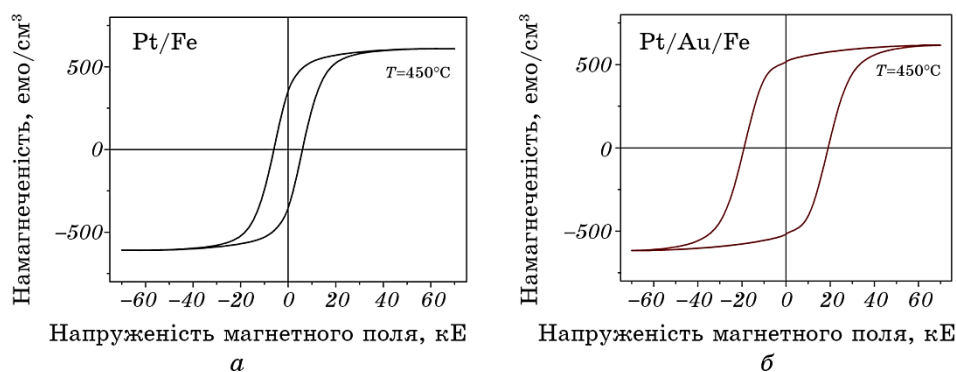
тури 380°C домінувати має зернограничний механізм дифузії, внаслідок чого границі зерен феромагнітної фази  $L1_0$ -FePt насичуються немагнітним елементом — Au. А це у свою чергу зменшує обмінну взаємодію між феромагнітними зернами і, тим самим, збільшує коерцитивну силу плівкового матеріалу.

Підвищення температури термічної обробки пліткових композицій без додаткового шару та з додатковим проміжним шаром Au до 450°C прискорює процес впорядкування (рис. 13). Збільшення вдвічі інтенсивності рефлексів від впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt на відповідних дифрактограмах свідчить, що кількість і ступень впорядкування даної фази у структурі досліджуваного плівкового матеріалу істотно зростають.

Оскільки концентраційний розподіл елементів за цієї температури суттєво не змінюється, ці дані не наводились. Єдиною відмінністю для тришарової композиції є збільшення концентрації Au у шарі FePt до 10 ат. %.

Коерцитивна сила двошарової плівкової композиції Pt/Fe після відпалу за температури 450°C збільшується до 6,25 кЕ (рис. 14, а). Також зафіксовано наступне збільшення коерцитивної сили композиції Pt/Au/Fe до 19,1 кЕ (рис. 14, б) в порівнянні з 18 кЕ, досягнутими на попередньому етапі термічної обробки. Цей ефект пов'язаний як зі збільшенням кількості і ступеню впорядкування фази  $L1_0$ -FePt, так і зі збільшенням вмісту Au в границях її зерен внаслідок інтенсифікації дифузійних процесів.

Після відпалу за температури 550°C пошаровий розподіл компонентів плівкової композиції Pt/Fe практично не змінюється (рис. 15, а). У плівковій композиції Pt/Au/Fe за цієї ж температури продовжується інтенсивна дифузія Au до зовнішньої поверхні крізь сфор-



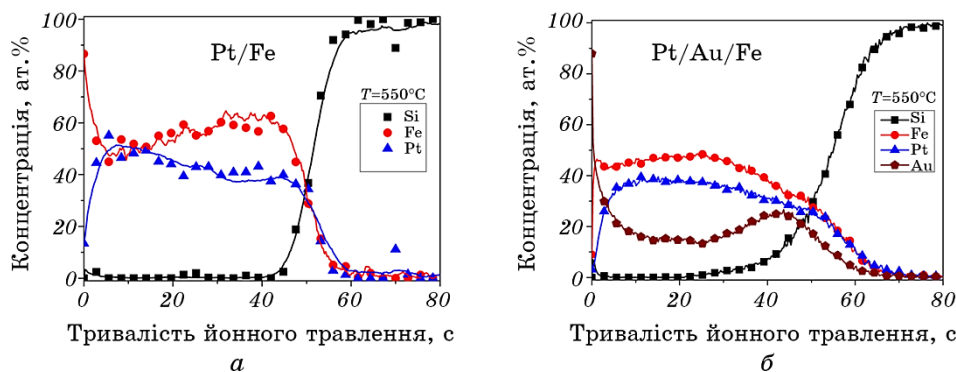
**Рис. 14.** Петлі магнітного гістерезису плівкових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 450°C.

**Fig. 14.** SQUID-VSM (M-H) hysteresis loops of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 450°C.

мований шар FePt (рис. 15, б). Концентрація Au в цьому шарі сягає 15 ат.%, відповідно концентрації Fe та Pt зменшуються порівняно із тими, що спостерігались для температур відпалу 380 і 450°C.

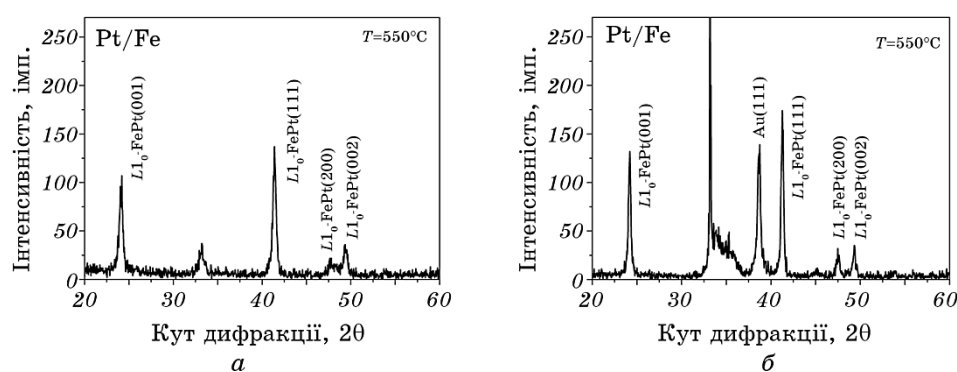
В результаті на дифрактограмах зростає не тільки інтенсивність дифракційних максимумів від впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt (рис. 16), але також і інтенсивність рефлексу (111) Au для тришарової системи. Останнє може бути пов'язано із збільшенням концентрації Au як в границях зерен фази  $L1_0$ -FePt, так і в сегрегаційному шарі на зовнішній поверхні.

Коерцитивна сила композиції Pt/Fe після відпалу за температу-



**Рис. 15.** Пошарові концентраційні розподіли компонентів плівкових композицій Pt/Fe (а) і Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 550°C.

**Fig. 15.** Composition *versus* sputtering time profiles of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (b) films after annealing at 550°C.



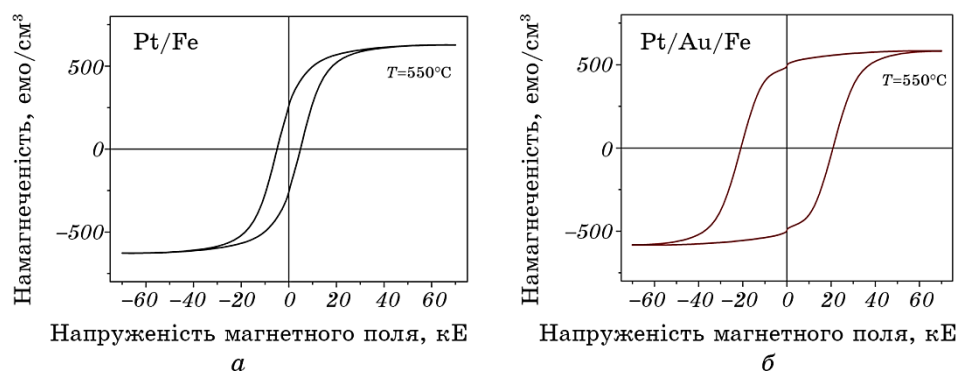
**Рис. 16.** Результати рентгеноструктурного фазового аналізу пліткових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 550°C.

**Fig. 16.** XRD ( $\theta$ – $2\theta$ ) scans of Pt/Fe (a) and Pt /Au/Fe (б) films after annealing at 550°C.

ри 550°C (рис. 17, а) суттєво не змінюється в порівнянні з попереднім етапом термічної обробки, а композиції Pt/Au/Fe — збільшується до 20,9 кЕ.

#### 4. ОБГОВОРЕННЯ

Додавання до системи Pt/Fe проміжного шару Au створює сприятливі умови для істотного прискорення дифузії атомів Fe та Pt, починаючи з температури 260°C. При цьому характерною особливіс-



**Рис. 17.** Петлі магнітного гістерезису пліткових композицій Pt/Fe (а) та Pt/Au/Fe (б) після відпалу за температури 550°C.

**Fig. 17.** SQUID-VSM (M-H) hysteresis loops of Pt/Fe (a) and Pt/Au/Fe (б) films after annealing at 550°C.

тю початкових етапів термічної обробки є дифузійна перебудова системи Pt/Au/Fe на систему FePt/Au. Наявність шару Au в приграничній з підкладинкою області дозволяє у подальшому забезпечити рівномірне насичення сформованого шару FePt атомами Au, які рухаються в напрямку зовнішньої поверхні та утворюють сегрегаційний шар на ній. Фаза FePt виконує функцію дифузійної мембрани [24] для атомів Au, що надає їм можливості рівномірно обволікати зерна цієї фази. Рушійною силою дифузії Au до зовнішньої поверхні є зменшення поверхневої енергії (поверхнева енергія Au становить  $1,3 \text{ Дж/м}^2$  [25]). Прискорена дифузія між Fe і Pt завдяки наявності Au інтенсифікує процес впорядкування фази FePt: інтенсивність надструктурних рефлексів від фази  $L1_0$ -FePt на дифрактограмах тришарових композицій є вищою порівняно з двошаровими композиціями Pt/Fe. Більша кількість впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt та підвищений ступінь її впорядкування забезпечують зростання коерцитивної сили для тришарових композицій. Особливого значення для досягнення покращених магнітно-твердих властивостей композицій Pt/Au/Fe набуває зернограничний механізм дифузії атомів Au. Заповнення границь зерен феромагнітної фази  $L1_0$ -FePt немагнітним елементом знижує магнітну взаємодію між зернами і, відповідно, збільшує коерцитивну силу аж до 20,9 кЕ. Характеристики плівкових композицій Pt/Fe і Pt/Au/Fe, досягнуті після термічної обробки за різних параметрів, наведено у зручній для порівняння формі у таблиці 1.

Одним із пояснень ефекту прискорення дифузійних процесів та формування впорядкованої фази в результаті додавання шару Au може бути дифузійно-індукована міграція границь зерен [26]. Різниця атомних потоків компонентів в границях зерен обумовлює зсув цих границь у напрямках, перпендикулярних до їх вихідного положення. В результаті формується або твердий розчин, або хімічна сполука — механізм формування реакційного шару, індукованого зернограничною дифузією [27]. Відомо, що останній механізм створює умови навіть для формування впорядкованих фаз. Іншим фактором прискорення процесів дифузії і впорядкування за наявності проміжного шару Au може бути і виникнення додаткових механічних напружень [22]. У зв'язку з нерівністю дифузійних потоків Fe та Pt границями зерен Au, проявляється переважний масоперенос атомів Fe з шару біля підкладинки до приповерхневого шару Pt. Суттєвого значення набуває нанокристалічний стан речовини, що характеризується великою протяжністю границь зерен, через що можливим стає виникнення напружень розтягу з боку шару Fe та стискаючих напружень з боку шару Pt. За наявності відповідних стоків/джерел (наприклад, дислокації, границі зерен, вільна поверхня, границя поділу з підкладинкою), напруження можуть релаксувати і область Fe стиснеться, а область Pt — розшириться.

**ТАБЛИЦЯ 1.** Значення інтенсивності рефлексу  $L1_0$ -FePt (001), коерцитивної сили та середньої концентрації Fe в шарі Pt композицій Pt/Fe і Pt/Au/Fe після різних режимів термічної обробки.

**TABLE 1.** Values of  $L1_0$ -FePt (001) peak intensity, coercivity and average concentration of Fe in Pt layer of Pt/Fe and Pt/Au/Fe stacks after various heat treatment regimes.

| Композиція                         | Інтенсивність рефлексу $L1_0$ -FePt (001), імп. | Коерцитивна сила, кЕ | Середня концентрація Fe в шарі Pt, % |
|------------------------------------|---|----------------------|--------------------------------------|
| Після відпалу за температури 215°C |   |                      |                                      |
| Pt/Fe                              | 20  | 4,25                 | 40                                   |
| Pt/Au/Fe                           | —   | 2,2                  | 10                                   |
| Після відпалу за температури 260°C |   |                      |                                      |
| Pt/Fe                              | 20  | 3,96                 | 40                                   |
| Pt/Au/Fe                           | 44  | 10,8                 | 50                                   |
| Після відпалу за температури 380°C |   |                      |                                      |
| Pt/Fe                              | 50  | 4,47                 | 50                                   |
| Pt/Au/Fe                           | 80  | 18                   | 50                                   |
| Після відпалу за температури 550°C |   |                      |                                      |
| Pt/Fe                              | 100   | 5,2                  | 50                                   |
| Pt/Au/Fe                           | 140   | 20,9                 | 45                                   |

При цьому, шар Au повинен зміститися у бік більш швидкого компоненту — до Fe, що і спостерігається експериментально. Формування та ріст фази FePt вздовж мігруючих границь зерен Au також можуть слугувати причиною виникнення додаткових напружень. Ці додаткові напруження, вочевидь, відсутні у двошаровій плівковій системі Pt/Fe, і тому можуть бути додатковим фактором, який викликає відмінності процесів дифузійного фазоутворення в дво- та тришаровій композиціях.

На початкових етапах відпалу збільшення рівня цих напружень не супроводжується помітною релаксацією. Однак, після досягнення певного критичного значення напружень, релаксація відбувається дуже швидко, що пояснює інтенсифікацію процесів дифузії у системі Pt/Au/Fe. Збільшення рівня напружень у фазі  $A1$ -FePt (стискаючих напружень вздовж напрямку  $\{100\}$ ) також є причиною суттєвого прискорення процесу впорядкування. Тобто, навіть якщо система має в своєму складі випадково орієнтовані зерна FePt з не-впорядкованою гранецентрованою кубічною структурою, але знаходиться під впливом неоднорідного поля напружень, то в деяких областях, в яких стискаючі напруження спрямовані в напрямку  $\{100\}$ , будуть інтенсифікуватися процеси впорядкування і фаза



FePt стане частково впорядкованою. Треба зауважити, що перетворення із неупорядкованого стану у впорядкований також є свого роду релаксацією напружень.

## 5. ВИСНОВКИ

Виявлено, що додавання проміжного шару Au до плівкової композиції Pt/Fe призводить до істотного прискорення дифузії атомів Fe та Pt, починаючи з температури 260°C. Прискорення дифузійних процесів в поєднанні з насиченням границь зерен феромагнітної фази  $L1_0$ -FePt немагнітним елементом — Au, внаслідок домінуючого зернограничного механізму його дифузії, обумовлюють досягнення суттєво вищих значень коерцитивної сили плівкових композицій Pt/Au/Fe порівняно з композиціями Pt/Fe: 20,9 кЕ і 5,2 кЕ після відпалу за температури 550°C відповідно. Прискорення дифузійних процесів внаслідок додавання шару Au обумовлене виникненням додаткових механічних напружень в плівковому матеріалі, релаксація яких відбувається шляхом формування впорядкованої фази  $L1_0$ -FePt.

## ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. A. Oleshkevych, A. Zamani, I. Kotenko, S. M. Voloshko, S. I. Sidorenko, and A. R. Rennie, *J. Alloys Compd.*, **535**: 108 (2012).
2. J. Yao, X. Zheng, W. Cai, and J. Sui, *J. Alloys Compd.*, **695**: 1243 (2017).
3. J. P. Enriquez, *Chalcogenide Letters*, **10**: 45 (2013).
4. A. J. Cavaleiro, A. S. Ramos, R. M. S. Martins, F. M. Braz Fernandes, and M. T. Vieira, *Vacuum*, **139**: 23 (2017).
5. J. Li, N. Sha, and Z. Zhao, *Appl. Surf. Sci.*, **454**: 233 (2018).
6. A. Tynkova, S. Sidorenko, S. Voloshko, A. R. Rennie, and M. A. Vasylyev, *Vacuum*, **87**: 69 (2013).
7. A. Herza, A. Franz, F. Theska, M. Hentschel, Th. Kups, D. Wanga, and P. Schaaf, *AIP Advances*, **6**: 035109 (2016).
8. B. Tlili, C. Nouveau, M. J. Walock, M. Nasri, and T. Ghrib, *Vacuum*, **86**: 1048 (2012).
9. J. Lyubina, B. Rellinghaus, O. Gutfleisch, and M. Albrecht, *Handbook of Magnetic Materials*, **19**: 291 (2011).
10. M. T. Kief and R. H. Victora, *MRS Bulletin*, **43**: 87 (2018).
11. K. Hono, Y. Takahashi, G. Ju, J.-U. Thiele, A. Ajan, X. Yang, R. Ruiz, and L. Wan, *MRS Bulletin*, **43**: 93 (2018).
12. A. Hafarov, O. Prokopenko, S. Sidorenko, D. Makarov, and I. Vladymyrskyi, *Modern Magnetic and Spintronic Materials. NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics*, **73**: (2020).
13. O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **31**: 285401 (2019).
14. I. O. Kruhlov, O. V. Shamis, N. Y. Schmidt et al., *Thin Solid Films*, **709**:

- 138134 (2020).
15. N. Y. Schmidt, S. Laureti, F. Radu, H. Ryll, C. Luo, F. d'Acapito, S. Tripathi, E. Goering, D. Weller, and M. Albrecht, *Phys. Rev. B*, **100**: 064428 (2019).
16. I. O. Kruhlov, O. V. Shamis, N. Y. Schmidt et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **32**: 365404 (2020).
17. C. Brombacher, H. Schletter, M. Daniel, P. Matthes, N. Joührmann, M. Maret, D. Makarov, M. Hietschold, and M. Albrecht, *J. Appl. Phys.*, **112**: 073912 (2012).
18. Sh. Kavita, Sh. Gagan, G. Mukul et al., *AIP Advances*, **8**: 105118 (2018).
19. G. L. Katona, N. Y. Safonova, F. Ganss et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **48**: 175001 (2015).
20. Y. S. Yu, H.-B. Li, W. L. Li, M. Liu, Y.-M. Zhang, and W. D. Fei, *J. Magn. Magn. Mater.*, **322**: 1770 (2010).
21. P. Rasmussen, X. Rui, and J. E. Shield, *Appl. Phys. Lett.*, **86**: 191915 (2005).
22. I. A. Vladymyrskyi, A. E. Gafarov, A. P. Burmak et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **49**: 035003 (2016).
23. X.-H. Xu, H.-Sh. Wu, F. Wang, and X.-L. Li, *Appl. Surf. Sci.*, **233**: 1 (2004).
24. Ю. Н. Макогон, С. М. Волошко, Е. П. Павлова, С. И. Сидоренко, О. В. Зеленин, М. А. Васильев, Ш. Тайхерт, *Металлофиз. новейшие технол.*, **23**, № 11: 1455 (2001).
25. D. Holec, Ph. Dumitraschkewitz, D. Vollath, and F. D. Fischer, *Nanomaterials*, **10**: 484 (2020).
26. G. L. Katona and S. Gulyas, *Modern Magnetic and Spintronic Materials. NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics*, **145** (2020).
27. D. L. Beke, Yu. Kaganovskii, and G. L. Katona, *Prog. Mater. Sci.*, **98**: 625 (2018).

## REFERENCES

1. A. Oleshkevych, A. Zamani, I. Kotenko, S. M. Voloshko, S. I. Sidorenko, and A. R. Rennie, *J. Alloys Compd.*, **535**: 108 (2012).
2. J. Yao, X. Zheng, W. Cai, and J. Sui, *J. Alloys Compd.*, **695**: 1243 (2017).
3. J. P. Enriquez, *Chalcogenide Letters*, **10**: 45 (2013).
4. A. J. Cavaleiro, A. S. Ramos, R. M. S. Martins, F. M. Braz Fernandes, and M. T. Vieira, *Vacuum*, **139**: 23 (2017).
5. J. Li, N. Sha, and Z. Zhao, *Appl. Surf. Sci.*, **454**: 233 (2018).
6. A. Tynkova, S. Sidorenko, S. Voloshko, A. R. Rennie, and M. A. Vasylyev, *Vacuum*, **87**: 69 (2013).
7. A. Herza, A. Franz, F. Theska, M. Hentschel, Th. Kups, D. Wanga, and P. Schaaf, *AIP Advances*, **6**: 035109 (2016).
8. B. Tlili, C. Nouveau, M. J. Walock, M. Nasri, and T. Ghrib, *Vacuum*, **86**: 1048 (2012).
9. J. Lyubina, B. Rellinghaus, O. Gutfleisch, and M. Albrecht, *Handbook of Magnetic Materials*, **19**: 291 (2011).
10. M. T. Kief and R. H. Victora, *MRS Bulletin*, **43**: 87 (2018).
11. K. Hono, Y. Takahashi, G. Ju, J.-U. Thiele, A. Ajan, X. Yang, R. Ruiz, and L. Wan, *MRS Bulletin*, **43**: 93 (2018).
12. A. Hafarov, O. Prokopenko, S. Sidorenko, D. Makarov, and I. Vladymyrskyi,

- Modern Magnetic and Spintronic Materials. NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics*, **73**: (2020).
13. O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **31**: 285401 (2019).
  14. I. O. Kruhlov, O. V. Shamis, N. Y. Schmidt et al., *Thin Solid Films*, **709**: 138134 (2020).
  15. N. Y. Schmidt, S. Laureti, F. Radu, H. Ryll, C. Luo, F. d'Acapito, S. Tripathi, E. Goering, D. Weller, and M. Albrecht, *Phys. Rev. B*, **100**: 064428 (2019).
  16. I. O. Kruhlov, O. V. Shamis, N. Y. Schmidt et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **32**: 365404 (2020).
  17. C. Brombacher, H. Schletter, M. Daniel, P. Matthes, N. Jöührmann, M. Maret, D. Makarov, M. Hietschold, and M. Albrecht, *J. Appl. Phys.*, **112**: 073912 (2012).
  18. Sh. Kavita, Sh. Gagan, G. Mukul et al., *AIP Advances*, **8**: 105118 (2018).
  19. G. L. Katona, N. Y. Safonova, F. Ganss et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **48**: 175001 (2015).
  20. Y. S. Yu, H.-B. Li, W. L. Li, M. Liu, Y.-M. Zhang, and W. D. Fei, *J. Magn. Magn. Mater.*, **322**: 1770 (2010).
  21. P. Rasmussen, X. Rui, and J. E. Shield, *Appl. Phys. Lett.*, **86**: 191915 (2005).
  22. I. A. Vladymyrskyi, A. E. Gafarov, A. P. Burmak et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **49**: 035003 (2016).
  23. X.-H. Xu, H.-Sh. Wu, F. Wang, and X.-L. Li, *Appl. Surf. Sci.*, **233**: 1 (2004).
  24. Yu. N. Makogon, S. M. Voloshko, E. P. Pavlova, S. I. Sydorenko, O. V. Zelenin, M. A. Vasyliiev, and Sh. Tayhert, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **23**, No. 11: 1455 (2001) (in Russian).
  25. D. Holec, Ph. Dumitraschkewitz, D. Vollath, and F. D. Fischer, *Nanomaterials*, **10**: 484 (2020).
  26. G. L. Katona and S. Gulyas, *Modern Magnetic and Spintronic Materials. NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics*, **145** (2020).
  27. D. L. Beke, Yu. Kaganovskii, and G. L. Katona, *Prog. Mater. Sci.*, **98**: 625 (2018).