

بررسی ویژگی‌های ساختاری، مغناطیسی و الکتریکی لایه‌های نیکل-آهن-کبالت و

بس لایه‌ای‌های $[FeNiCo/Cu]_{60}$ و $[FeNiCo/Cu]_{30}$

ابراهیم پایمزد* و علی قاسمی

دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، شاهین شهر، ایران

(تاریخ دریافت: ۱۴۰۳/۲/۳؛ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۳/۶/۷)

<https://doi.org/10.47176/jame.43.2.1050>

چکیده: لایه نیکل-آهن-کبالت با ویژگی‌های مغناطیسی نرم، دارای ناهمسانگردی مغناطوبلوری و مغناطوتنگش کمینه، برای حسگرهای مغناطیسی با اثر مغناطومقاومت بزرگ کاربرد دارد. در این پژوهش، پوشش‌دهی تک‌لایه‌های $Ni_{56}Fe_{21}Co_{23}$ و $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ ، $Ni_{76}Fe_{11}Co_{13}$ ، پوشش‌دهی تک‌لایه‌های $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ و $Ni_{76}Fe_{11}Co_{13}$ ، مغناطیسی و الکتریکی آن‌ها مورد بحث قرار گرفتند. افزایش مقدار نیکل در محلول الکترولیت، سبب تغییر در ترکیب شیمیایی و ریخت لایه و همچنین کاهش وادارندگی شد. لایه با ترکیب شیمیایی ۶۶ درصد اتمی نیکل، کم‌ترین وادارندگی و بیش‌ترین مغناطش اشباع را نشان داد. ترکیب اسمی $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ در زمان‌های گوناگون بر بستر مس لایه‌نشانی شد. نتایج نشان داد که افزایش زمان لایه‌نشانی و ضخامت لایه، نخست سبب کاهش وادارندگی تا ۱۷ اورستد و سپس افزایش آن تا ۴۵ اورستد برای لایه $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ شده است. همچنین بس لایه‌ای‌های $[FeNiCo/Cu]_{60}$ و $[FeNiCo/Cu]_{30}$ سنتز شدند. نتایج نشان داد که افزایش شمار لایه‌ها از ۳۰ به ۶۰ لایه، کاهش وادارندگی را از ۴۳/۱ به ۳۸/۴ اورستد و همچنین افزایش نسبت مربعی شدن Mr/Ms را از ۰/۴۶ به ۰/۵۱ در پی دارد. تغییرات مغناطومقاومت بس لایه‌ای‌های $[NiFeCo/Cu]_{60}$ و $[NiFeCo/Cu]_{30}$ ، به ترتیب کاهش مقاومت الکتریکی حدود ۱۵ و ۶ درصدی را نشان داد.

واژه‌های کلیدی: لایه فرومغناطیس، لایه‌نشانی الکترولیتی، مغناطومقاومت، ویژگی‌های مغناطیسی، نیکل-آهن-کبالت.

* مسئول مکاتبات، پست الکترونیکی: paimozd@gmail.com

A Study on the Structural, Magnetic, and Electrical Characterization of Nickel-Iron-Cobalt Films and [FeNiCo/Cu]₃₀ and [FeNiCo/Cu]₆₀ Multilayers

E. Paimozd* and A. Ghasemi

Department of Materials Engineering, Malek Ashtar University of Technology, Shahin shahr, Iran

ABSTRACT

The nickel-iron-cobalt film with soft magnetic properties, having a minimal magnetocrystalline anisotropy and magnetostriction are applied in the magnetic sensors with giant magnetoresistance effect. In this work, single layers of Ni₇₆Fe₁₁Co₁₃, Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈, and Ni₅₆Fe₂₁Co₂₃ were coated by the electrochemical method, and then the results of the structural, magnetic, and electrical evaluation were discussed. An increase in the concentration of nickel in the electrolyte solution caused a change in the chemical composition, and morphology of the layers, and also reduced the coercive field. The layer containing 66 atomic percent nickel showed the lowest coercivity and the highest saturation magnetization. The single layers of Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ were deposited on the copper substrate at different times. The results indicated that increasing the deposition time and thickness firstly decreased the coercive field up to 17 Oe, and then increased it up to 45 Oe for the Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ layer. Also, multilayers of [NiFeCo/Cu]₃₀ and [NiFeCo/Cu]₆₀ were synthesized. An increase in the number of layers from 30 to 60 revealed a decrease in the coercive field from 43.1 Oe to 38.4 Oe, as well as an increase in the Mr/Ms squareness ratio from 0.46 to 0.51. The magnetoresistance of [NiFeCo/Cu]₆₀ and [NiFeCo/Cu]₃₀ multilayers indicated an electrical resistance reduction of about 15% and 6%, respectively.

Keywords: Ferromagnetic film, Electrodeposition, Magnetoresistance, Magnetic properties, Nickel-iron-cobalt.

فهرست علامت‌ها

HC	وادرندگی (Oe)	W	جزء وزنی (g)
Mr	مغناطش باقیمانده (emu/g)	μ	ضریب جذب جرمی (cm ² /g)
MS	مغناطش اشباع (emu/g)	ρ	چگالی (g/cm ³)
Sq	نسبت مربعی شدن (بدون واحد)	ω	زاویه تابش پرتو ایکس با سطح لایه (درجه)

۱- مقدمه

جریان گردابی پایین در جریان متناوب، دمای کوری پایین و نفوذپذیری مستقل از دما دارند. آلیاژهای نیکل- آهن در حوزه‌های مختلفی مانند سپرهای محافظ امواج الکترومغناطیس، ترانسفورماتورها، هدهای خواندن اطلاعات، موتورهای گشتاور مغناطیسی و حسگرهای مغناطیسی کاربرد دارند (۳ و ۴). افزودن کبالت به نیکل- آهن، ترکیب Ni-Fe-Co را با کمینه ضریب انبساط گرمایی ایجاد می‌کند. خانواده آلیاژ نیکل- آهن- کبالت می‌تواند از طریق رسوب‌سختی، استحکام‌دهی شود. این آلیاژ با ضریب انبساط گرمایی پایین و استحکام بالا، ویژگی منحصر به فردی را برای عملکرد در یک بازه دمایی فراهم می‌کند که ابعاد آن تغییر نمی‌کند (۵ و ۶).

مقاومت الکتریکی مواد با خاصیت مغناطیسمقاومتی تحت تأثیر میدان مغناطیسی تغییر می‌کند. لایه‌های دوتایی با دو یا چند جنس گوناگون که تغییرات قابل توجهی در مقاومت الکتریکی تحت تأثیر میدان مغناطیسی نشان می‌دهند، به‌عنوان مواد دارای مغناطیسمقاومت بزرگ شناخته می‌شوند و به‌عنوان حسگرهای مغناطیسی به‌کار می‌روند. رفتار مغناطیسمقاومت بزرگ در ساختارهای نانومواد گوناگون، لایه‌های ضخیم و به‌ویژه لایه نازک به‌صورت چندتایی، به‌ویژه در مواد فرومغناطیسی مشاهده می‌شود (۱ و ۲). آلیاژهای مغناطیسی نرم نیکل- آهن با ۳۰ تا ۸۰ درصد وزنی نیکل، نفوذپذیری بالا، تلفات پسماند مغناطیسی کم، تلفات

جدول ۱- مشخصات مواد اولیه مورد استفاده در پژوهش.

ماده شیمیایی	سولفات آهن	سولفات نیکل	سولفات کبالت	سولفات مس	آمونیم سولفات	اسیدسیتریک	اسید بوریک
شماره محصول	۷۷۸۲۶۳۰	۱۰۱۰۱۹۷۰	۱۰۰۲۶۲۴۱	۷۷۵۸۹۸۷	۷۷۸۳۲۰۲	۷۷۹۲۹	۱۰۰۴۳۳۵۳
فرمول شیمیایی	FeSO ₄ .7H ₂ O	NiSO ₄ .6H ₂ O	CoSO ₄ .7H ₂ O	CuSO ₄ .5H ₂ O	(NH ₄) ₂ SO ₄	C ₆ H ₈ O ₇	H ₃ BO ₃
خلوص (درصد)	> ۹۹/۵	> ۹۹	> ۹۹	> ۹۹	> ۹۹	> ۹۹/۵	> ۹۹/۵

۲- مواد و روش تحقیق

برای ایجاد پوشش‌های الکتریکی NiFeCo و Cu، از مواد اولیه شامل سولفات آهن، سولفات نیکل، سولفات کبالت، سولفات مس، آمونیوم سولفات، اسید سیتریک و اسید بوریک با خلوص بالا و تهیه شده از شرکت مرک استفاده شد که مشخصات آن‌ها در جدول (۱) آورده شده است. مس و نیکل به ترتیب به‌عنوان کاتد و آند انتخاب شدند.

یک منبع تغذیه DC- 30V, 5A با دقت ۰/۱ ولت برای ایجاد اختلاف پتانسیل و برقراری جریان مناسب در فرایند پوشش‌دهی الکتریکی به‌کار گرفته شد. از آنجا که جریان پوشش‌دهی باید با دقت اندازه‌گیری شود، آمپرمتر با دقت ۰/۱ میلی‌آمپر استفاده شد.

برای ایجاد NiFeCo با ترکیب‌های شیمیایی گوناگون، فرآیند پوشش‌دهی الکتریکی در سه حمام با غلظت‌های گوناگون مواد اولیه برای رسیدن به لایه با ترکیب‌های اسمی (Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈)، (Ni₇₆Fe₁₁Co₁₃) و (Ni₅₆Fe₂₁Co₂₃) انجام شد. پس از آماده‌سازی حمام الکترولیت با غلظت‌های گوناگون یونی، با pH معادل ۳/۱ برای پوشش‌دهی تنظیم شد. برای کنترل pH حمام، از اسید سولفوریک و آمونیوم هیدروکسید استفاده شد. جریان مناسب برای لایه‌نشانی ۱۵ mA ولتاژ مناسب هر یک از حمام‌های (Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈)، (Ni₇₆Fe₁₁Co₁₃) و (Ni₅₆Fe₂₁Co₂₃) به ترتیب ۲/۲، ۲/۸ و ۲/۴ آمپر ثبت شدند.

به دنبال آن برای دستیابی به ضخامت‌های گوناگون لایه Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈، فرآیند پوشش‌دهی در زمان‌های ۳۰، ۴۵، ۶۰، ۷۵، ۹۰ و ۱۸۰ ثانیه با شدت جریان ثابت ۱۵ mA انجام شد. همچنین بس‌لایه‌های [NiFeCo/Cu]₃₀ از رسوب‌گذاری پی‌درپی

فرآیند الکتروانباشت در ایجاد نانوساختارها، توان عملیاتی بالایی دارد و می‌توان دقت زیادی را در کنترل شرایط آن فراهم آورد. افزون بر پیاده‌سازی ساده فرآیند، هزینه‌های پایین نیز از برتری‌های این روش است. در این فرآیندها، سازوکار رشد نسبت به روش‌های خلاء متفاوت است و پارامترهای ویژه‌ای مانند pH الکترولیت، غلظت، پتانسیل الکتروانباشت، افزودنی‌ها و زیرلایه در کنار ایجاد حالت پتانسیل ثابت بر ویژگی‌های لایه انباشت شده مؤثر است. لایه‌های فرومغناطیسی نیکل-آهن-کبالت دارای ویژگی‌های مغناطومقاومتی هستند و هنگامی که به‌صورت چندلایه همراه با لایه‌های نازک از جنس مس به‌کار روند، می‌توانند مغناطومقاومت بزرگی را نشان دهند. ترکیب آلیاژی Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ دارای ناهمسانگردی مغناطوبلوری است و ثوابت مغناطوتنگش آن تقریباً صفر است؛ بنابراین، این ترکیب گزینه مناسبی برای ایجاد مغناطومقاومت بزرگ و حسگرهای مغناطیسی محسوب می‌شود (۱۰-۷).

دستیابی به ترکیب شیمیایی و ضخامت بهینه لایه برای رسیدن به مغناطومقاومت بزرگ اهمیت بسزایی دارد. در این پژوهش، ابتدا لایه‌های NiFeCo به‌منظور دستیابی به ترکیب‌های اسمی Ni₅₆Fe₂₁Co₂₃ و Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈، Ni₇₆Fe₁₁Co₁₃ از طریق پوشش‌دهی الکترولیتی در حمام‌های با غلظت‌های مورد نظر بر زیرلایه مس ایجاد شدند. سپس، ترکیب شیمیایی Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ با ضخامت‌های گوناگون لایه‌نشانی شد و در ادامه، لایه‌های تکی و چندلایه‌ای پوشش‌دهی شدند. ویژگی‌های ساختاری، مغناطیسی و مغناطومقاومتی لایه‌ها مورد ارزیابی و مطالعه قرار گرفتند.

۷۶ درصد اتمی باعث کاهش شدت نسبی قله‌های پراش فاز NiFeCo و افزایش NiFe شده است. به نظر می‌رسد که رسیدن به فاز NiFeCo با ترکیب‌های شیمیایی Ni₅₆Fe₂₁Co₂₃ و Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ دست یافتنی است. فاز NiCo در پوشش Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ و مقدار نیکل کم‌تر شکل می‌گیرد، درحالی‌که در ترکیب با مقدار نیکل بیش‌تر سبب می‌شود FeNi، افزایش می‌یابد. فاز NiFeCo با صفحات (۱۱۱)، (۰۰۲) و (۰۲۲) با الگوی استاندارد شماره ۰۰۸۹-۹۰۰-۹۶ و صفحه مربوط به زاویه $2\theta = 36^\circ$ با ساختار آهن-نیکل با الگوی استاندارد شماره ۱۴۰۵-۰۴۷-۰۰ از مرجع pdf2 تطابق دارد.

در پراش پرتو ایکس عمودی، عمق نفوذ در فلزات چند میکرومتر و در سرامیک‌ها چند ده میکرومتر است. در مطالعات سطوح فلزها با تابش تحت زوایای بسیار کم که نتیجه آن پراش پرتو از لایه‌های بیرونی سطح است، حساسیت روش کم می‌شود. هرچه زاویه فرود کم‌تر باشد، عمق نفوذ پرتو ایکس کم‌تر است. طول مسیر L برای زاویه برخورد با سطح α و زاویه براگ 2θ در نمونه با ضخامت X، طبق رابطه (۲) به دست می‌آید (۱۵-۱۲).

$$L = X \left(\frac{1}{\sin \omega} + \frac{1}{\sin(2\theta - \omega)} \right) \quad (2)$$

بخشی از شدت پراش یافته کل G_x ، که با ضخامت نمونه پراش یافته است تابع رابطه (۳) است.

$$G_x = 1 - e^{-\mu X \left(\frac{1}{\sin \omega} + \frac{1}{\sin(2\theta - \omega)} \right)} \quad (3)$$

چنان‌چه عمقی که بخشی از شدت پراش یافته کل G_x برابر ۰/۹۹ عمق نفوذ لحاظ شود، طبق قانون بیر-لامبرت^۵ عمق نفوذ پرتو ایکس پراش یافته، از رابطه‌های (۴) و (۵) قابل محاسبه است (۱۶ و ۱۷).

$$I = I_0 e^{-\mu X} \quad (4)$$

$$x = \frac{-\ln(1 - G_x)}{2880 \left[\frac{1}{\sin \omega} + \frac{1}{\sin(2\theta - 1)} \right]} \quad (5)$$

جدول ۲- زمان رسوب‌گذاری لایه Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ الکتروشیمیایی

شماره نمونه	A	B	C	D	E	F
زمان (S)	۳۰	۴۵	۶۰	۷۵	۹۰	۱۸۰

Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ و Cu با تغییر ولتاژ به ۰/۴ ولت و جریان ۵ به مدت ۳۰ ثانیه به دست آمد. شماره‌گذاری نمونه‌های تک لایه مطابق جدول (۲) نام‌گذاری شدند.

ریزساختارهای لایه‌های نیکل-آهن-کبالت با میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی MIRA TSCAN، مورد بررسی قرار گرفتند. همچنین طیف‌سنجی پراش انرژی پرتو ایکس^۲ برای شناسایی عناصر موجود، به کار گرفته شد. لایه‌های نیکل-آهن-کبالت، با آزمون پراش پرتو ایکس خراشان با تابش لامپ Cu K α و طول موج $\lambda = 1/5405 \text{ \AA}$ در محدوده $2\theta = 30^\circ - 80^\circ$ قرار گرفتند که زاویه تابش پرتو ایکس با سطح لایه $\omega = 1^\circ$ برای نفوذ نکردن پرتو به زیرلایه در نظر گرفته شد.

ویژگی‌های مغناطیسی نمونه‌ها از راه مغناطوسنج ارتعاشی^۳ با بیشینه میدان کاربستی، ۱۰ kOe اندازه‌گیری شد. برای تعیین مقاومت ویژه الکتریکی از روش گمانه چهار نقطه‌ای^۴ با فواصل یکسان گمانه‌ها، استفاده شد. در این روش، جریان ثابت کوچک I از دو پروب بیرونی عبور کرده و ولتاژ V میان گمانه‌های درونی اندازه‌گیری می‌شود. برای ضخامت W نمونه که بسیار کم‌تر از فاصله بین پروب‌ها d است، مقاومت ویژه الکتریکی ρ ، از طریق رابطه (۱) به دست می‌آید (۱۱).

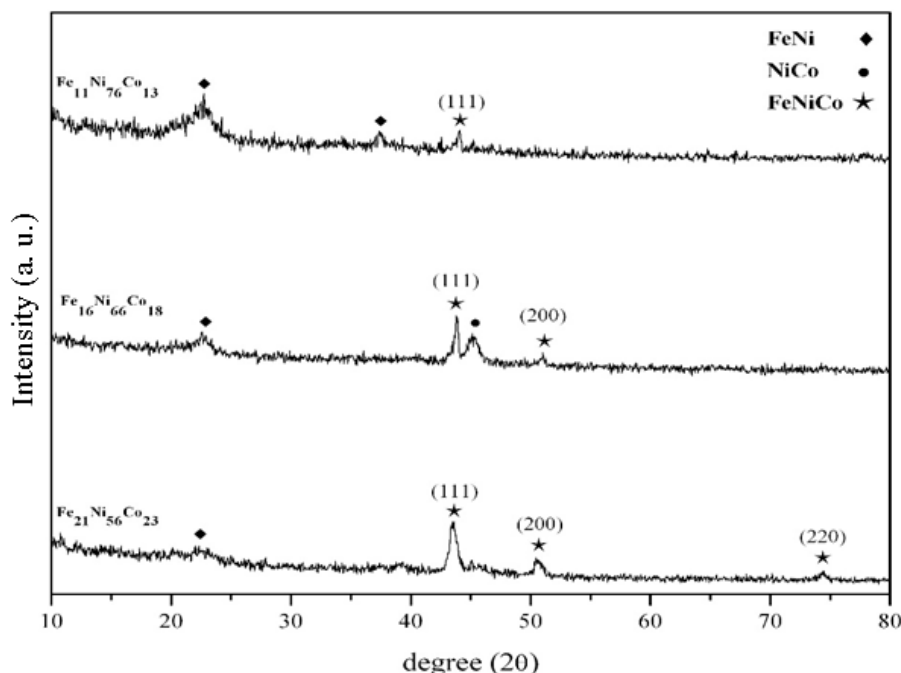
$$\rho = \frac{V}{I} \cdot W \cdot CF (\Omega \cdot \text{cm}) \quad (1)$$

که در آن W ضخامت و CF سازه تصحیح است.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- ارزیابی‌های ساختاری لایه‌های نیکل-آهن-کبالت

در شکل (۱)، الگوهای پراش پرتو ایکس لایه‌های Ni₅₆Fe₂₁Co₂₃، Ni₇₆Fe₁₁Co₁₃، Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ آورده شده است. همان‌گونه که دیده می‌شود افزایش میزان نیکل از ۵۶ به



شکل ۱- الگوهای پراش پرتو ایکس لایه‌های $\text{Ni}_{76}\text{Fe}_{11}\text{Co}_{13}$ ، $\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$ و $\text{Ni}_{56}\text{Fe}_{21}\text{Co}_{23}$.

جدول ۳- میزان نفوذ پرتو ایکس در لایه‌های با ترکیب‌های مختلف

بیش‌ترین میزان نفوذ پرتو ایکس ($\times 10^{-7}$ cm)	(μ/ρ) (cm^2/g)	μ ($1/\text{cm}$)	ρ (g/cm^3)	ترکیب شیمیایی
۲۷۲/۸	۳۳۰/۱۲	۲۸۷۵/۱	۸/۶۸	$\text{Ni}_{56}\text{Fe}_{21}\text{Co}_{23}$
۲۷۲/۴	۳۳۰/۱۲	۲۸۸۰	۸/۷۲	$\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$
۲۷۲/۳	۳۳۰/۱۲	۲۸۸۰/۳	۸/۷۶	$\text{Ni}_{76}\text{Fe}_{11}\text{Co}_{13}$

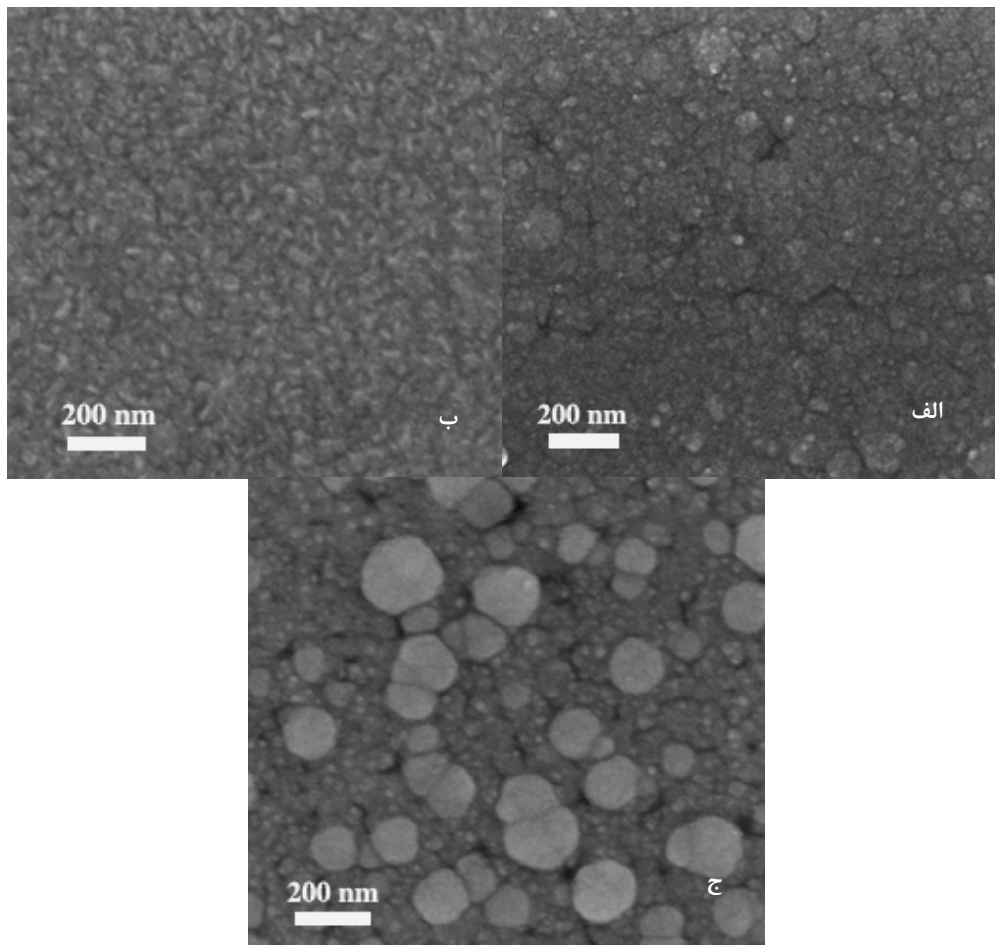
در نتیجه، میزان نفوذ پرتو ایکس در لایه پوشش داده شده که براساس رابطه (۷) قابل محاسبه است، مطابق جدول (۳) به‌دست آمد.

$$X = \frac{4.61}{2880 \left[\frac{1}{\sin \omega} + \frac{1}{\sin(2\theta-1)} \right]} \quad (7)$$

از آنجایی که عمق نفوذ و شدت پراش پرتو ایکس به زاویه فرود پرتو ایکس به سطح وابسته است و در اینجا زاویه برخوردی پرتو ایکس به سطح برای هر سه لایه یکسان و برابر با 1° است، پس فقط غلظت اتم‌ها و ضریب جذب ماده در میزان نفوذ مؤثر است که با توجه به نزدیک بودن ویژگی‌های جذبی عناصر، میزان نفوذ در لایه آن‌ها برابر است.

با توجه به نتایج پراش پرتو ایکس برای $\omega = 1^\circ$ و $2\theta = 44^\circ$ ، عمق نفوذ پرتو ایکس برای لایه‌های $\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$ ، $\text{Ni}_{56}\text{Fe}_{21}\text{Co}_{23}$ و $\text{Ni}_{76}\text{Fe}_{11}\text{Co}_{13}$ تحت تأثیر جذب جرمی نیکل، کبالت و آهن است. باید توجه داشت که ضریب جذب جرمی لایه، تابع درصد اتمی آن‌ها است؛ بنابراین، ضریب جذب جرمی هر یک از لایه‌ها، با توجه به رابطه $\bar{\mu}_i = \rho_i \sum_{j=1}^i \left(\frac{\mu}{\rho} \right) W_{ij}$ ، طبق رابطه (۶) محاسبه می‌شود.

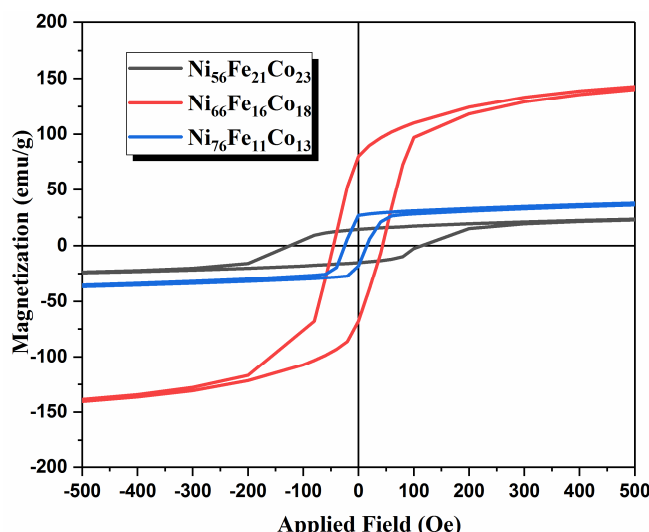
$$\left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{Ni,Fe,Co}} = W_{\text{Ni}} \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{Ni}} + W_{\text{Fe}} \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{Fe}} + W_{\text{Co}} \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{Co}} \quad (6)$$



شکل ۲- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی الف- $\text{Ni}_7\text{Fe}_{11}\text{Co}_{13}$ ، ب- $\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$ و ج- $\text{Ni}_{56}\text{Fe}_{21}\text{Co}_{23}$.

سطحی تأثیرگذار هستند و ریخت لایه رسوب داده شده را تعیین می‌کنند (۱۸). در اینجا، مقاومت الکتریکی محلول و تا حدودی پلاریزاسیون غلظتی یون‌ها سبب تغییر مورفولوژی می‌شود. می‌توان ضخامت لایه را با توجه به چگالی، زمان لایه‌نشانی، سطح لایه‌نشانی شده و جریان مورد نیاز برای لایه‌نشانی برآورد کرد. برای این کار نخست، چگالی ترکیب $\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$ محاسبه می‌شود. با توجه به درصد وزنی $15/3$ برای Fe، $66/5$ برای Ni و $18/2$ برای Co و چگالی اجزای تشکیل دهنده، می‌توان جزء حجمی^۶ هر یک از عناصر را به دست آورد. بر اساس چگالی اجزاء، جزء حجمی هر یک از عناصر به ترتیب برابر با $65/6$ درصد برای $f_{V,Ni}$ ، $18/1$ درصد برای $f_{V,Fe}$ و $16/2$ درصد برای $f_{V,Co}$ است. بنابراین، چگالی آلایژ $\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$ برابر با $8/71 \text{ g/cm}^3$ به دست می‌آید.

تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی از سطح نمونه‌های لایه‌نشانی شده در شکل (۲) آورده شده است. جزایر شکل گرفته بر سطح لایه می‌توانند به عنوان دانه‌ها در نظر گرفته شوند. برای ترکیب شیمیایی $\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$ ، اندازه این دانه‌ها حدوداً 50 نانومتر بوده و ذراتی با اندازه حدوداً 100 نانومتر نیز مشاهده شده‌اند. در شکل (۲- الف)، تصویر میکروسکوپی الکترونی از نمونه $\text{Ni}_{7}\text{Fe}_{11}\text{Co}_{13}$ نشان داده شده است. در این تصویر، دانه‌های نمونه به شکل کروی و با ابعاد یکسان مشاهده می‌شوند. در مقایسه، نمونه با 66 درصد نیکل ($\text{Ni}_{66}\text{Fe}_{16}\text{Co}_{18}$) دانه‌هایی با ابعاد متفاوت دارد. همچنین، مورفولوژی لایه $\text{Ni}_{56}\text{Fe}_{21}\text{Co}_{23}$ تفاوت قابل توجهی نسبت به دو نمونه دیگر دارد. ترکیب شیمیایی محلول، قطبش غلظتی، چگالی جریان، مقاومت محلول، آهنگ لایه‌نشانی، pH، دما و عوامل افزودنی بر کشش



شکل ۳- منحنی‌های پسماند مغناطیسی لایه‌های با ترکیب‌های شیمیایی $Ni_{56}Fe_{21}Co_{23}$ و $Ni_{76}Fe_{11}Co_{13}$ ، $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$.

۲-۳- نتایج ارزیابی‌های مغناطیسی

منحنی‌های پسماند مغناطیسی نمونه‌های لایه‌نشانی شده به روش الکتروشیمیایی با ترکیب شیمیایی $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ ، $Ni_{56}Fe_{21}Co_{23}$ و $Ni_{76}Fe_{11}Co_{13}$ در شکل (۳) آورده شده است. تغییرات ترکیب شیمیایی سبب تغییر مشخصه‌های وادارندگی و مغناطش اشباع می‌شود. این تغییرات برآمده از تغییر ساختار ماده و مورفولوژی لایه است که بیش‌ترین نیروی وادارندگی را برای ۵۶ درصد نیکل و بیش‌ترین مغناطش اشباع را برای ۶۶ درصد نیکل سبب می‌شود. وادارندگی بیشینه می‌تواند مربوط به بالا بودن مقدار کبالت و شکل دانه‌ها در سطح پوشش باشد. از سوی دیگر، میزان پوشش اعمال شده و ترکیب شیمیایی فازهای تشکیل شده نیز می‌تواند عامل بالا بودن مغناطش اشباع نمونه با ۶۶ درصد نیکل باشد که به شرایط لایه‌نشانی با توجه به غلظت محلول الکترولیت مرتبط است.

بنابراین، لایه‌ای با ترکیب $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ بیش‌ترین مغناطش اشباع را دارد. همچنین با افزایش میزان نیکل به ۷۶ درصد، رفتار مغناطیسی نرم‌تر می‌شود و نسبت مربعی شدن Mr/Ms افزایش پیدا می‌کند که به ناهمسانگردی مغناطوبلوری مربوط است و نشان می‌دهد که ناهمسانگردی مغناطوبلوری با دور شدن از ترکیب $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ ناپدید شده است. چنانچه

تغییرات وزنی نمونه، پیش و پس از لایه‌نشانی به مدت شش دقیقه با ترازوی با دقت بالا $10^{-4} g$ به مقدار $0.0009 g$ $\Delta w =$ اندازه‌گیری شد. از سوی دیگر با فرض یکسان بودن تقریبی ضخامت پوشش در بخش‌های گوناگون سطح با توجه به نزدیک بودن ویژگی‌های الکتروشیمیایی آن‌ها، حجم لایه رسوبی برابر با حاصلضرب مساحت A (سطح پوشش داده شده) در ضخامت t است.

$$V = \frac{m}{\rho} \rightarrow V = 1.033 \times 10^{-4} \text{ cm}^3$$

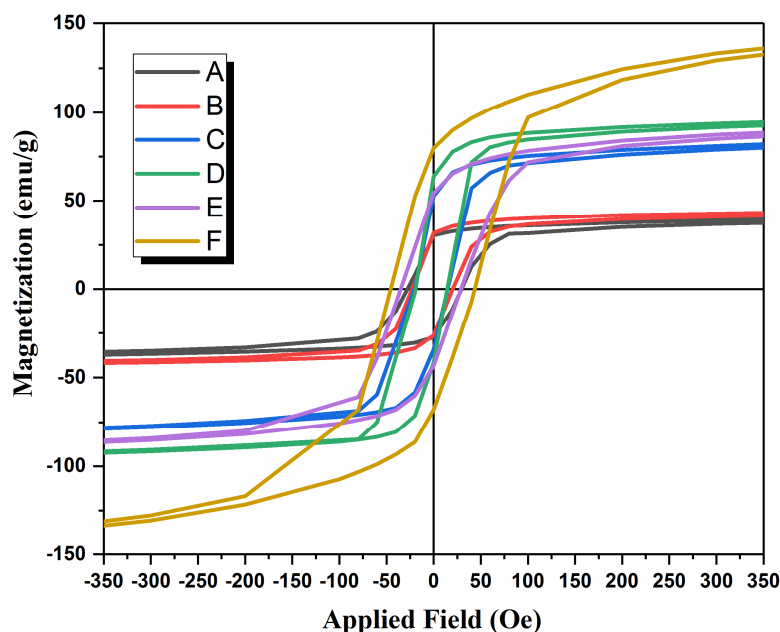
$$\Rightarrow t = 0.283 \text{ } \mu\text{m}$$

$$V = A \times t \quad V = 3.64t \text{ cm}^3$$

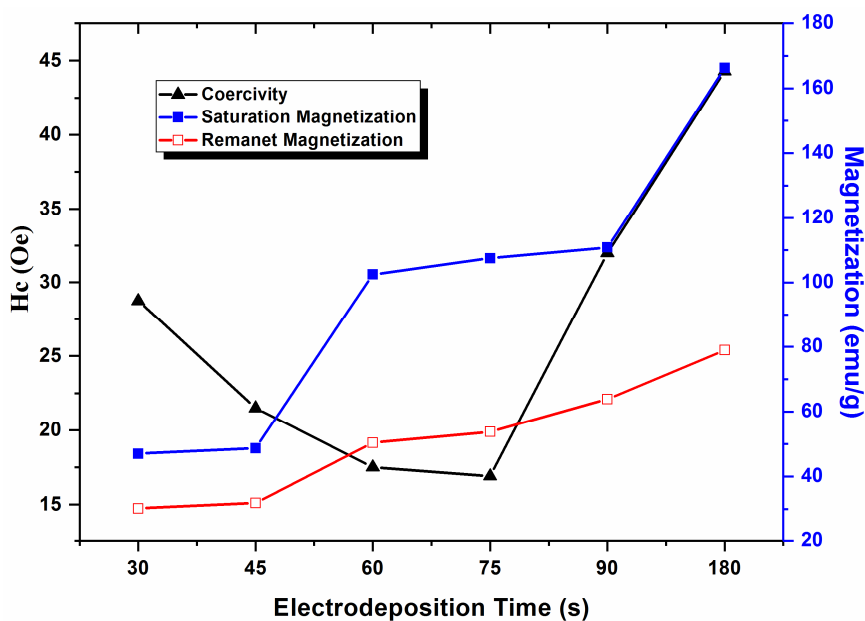
ضخامت 283 nm برای مدت زمان 6 min لایه‌نشانی بود و برای زمان 12 min ، تغییر وزن $m = 0.012 g$ و ضخامت 377 nm در لایه نشانی اتفاق افتاد.

همچنین می‌توان با توجه به مقدار جریان I و زمان لایه‌نشانی t و جرم اتمی فلز M ، وزن رسوب داده شده بر سطح نمونه در مدت زمان شش دقیقه را به دست آورد (۱۹). که $F = 96500$ و n بار یون فلزی است.

$$W = \frac{ItM}{nF} \rightarrow W = 8.2 \times 10^{-4} g$$



شکل ۴- منحنی‌های پسماند نمونه‌های لایه‌نشانی شده در زمان‌های گوناگون (A, B, C, D, E, F) و با ترکیب شیمیایی $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$.

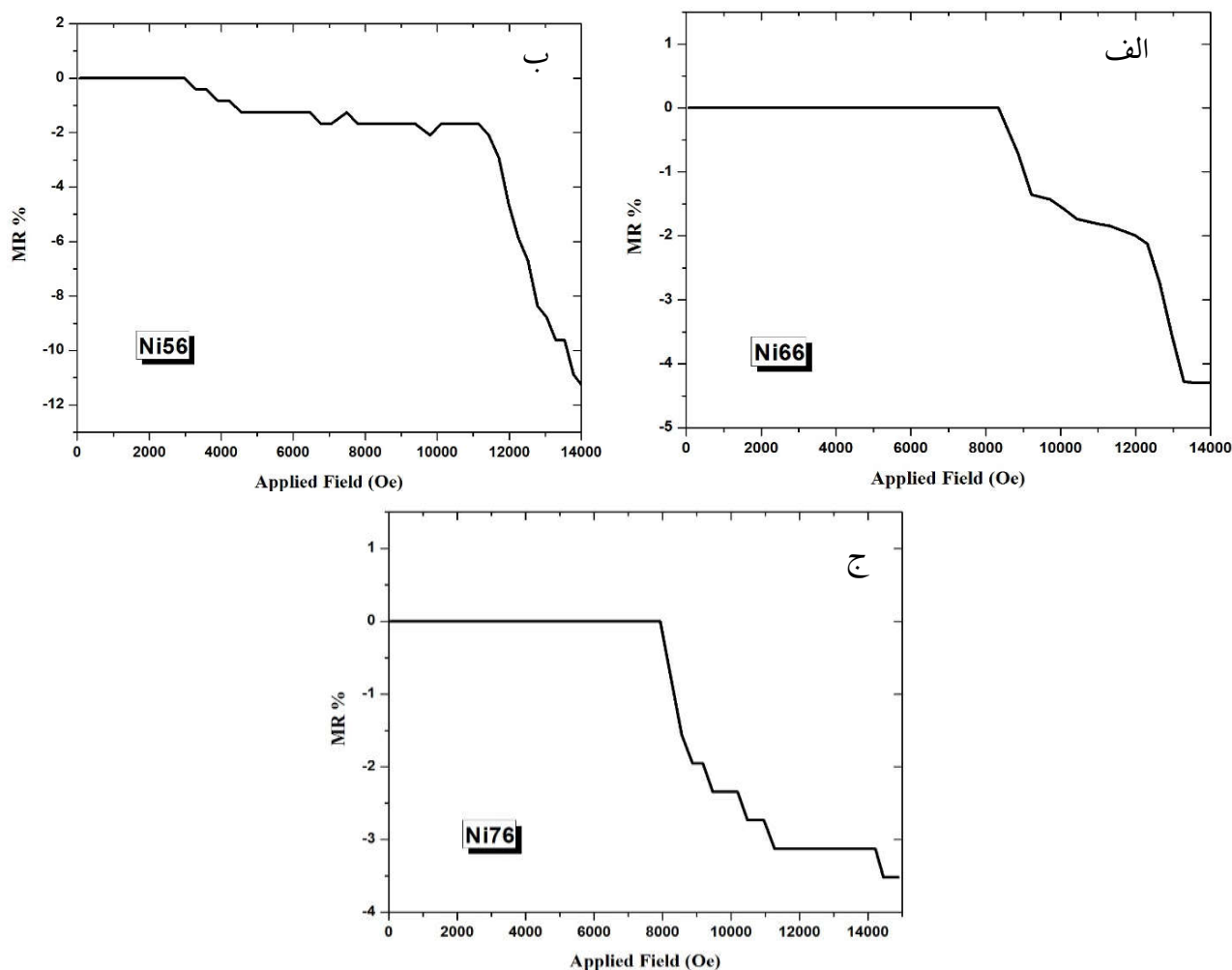


شکل ۵- تغییرات وادارندگی، مغناطش اشباع و مغناطش باقی مانده لایه‌نشانی شده در زمان‌های گوناگون (A, B, C, D, E, F) و با ترکیب شیمیایی $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$.

شکل (۴) آورده شده‌اند.

برای بررسی دقیق‌تر رفتار مغناطیسی، تغییرات وادارندگی بر حسب زمان لایه‌نشانی برای این نمونه‌ها در شکل (۵) نشان داده شده است. افزایش ضخامت لایه، باعث کاهش وادارندگی

طبق پژوهش‌های دیگر (۱۰)، ترکیب $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ ناهمسانگردی مغناطیسی ندارد. منحنی‌های پسماند مغناطیسی نمونه‌های لایه‌نشانی شده به روش الکتروشیمیایی $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ با زمان‌های گوناگون در



شکل ۶- تغییرات مغناطومقاومت بر حسب میدان مغناطیسی لایه نازک ترکیب‌های، الف- (N56) Ni₅₆Fe₂₁Co₂₃ - ب- (N66) Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ و ج- (N76) Ni₇₆Fe₁₁Co₁₃.

آهن دارند (۲۰).

همچنین افزایش ضخامت لایه نیکل-آهن-کبالت منجر به افزایش مغناطش اشباع و مغناطش باقی‌مانده می‌شود. افزایش هر دو مقدار، ناشی از افزایش مقدار ماده مغناطیسی و در نتیجه افزایش گشتاور مغناطیسی در یکای حجم است که البته در پژوهش‌های دیگر نیز همین رفتار برای M_r و M_s ارائه شده‌اند. از سوی دیگر افزایش وادارندگی برای نمونه‌های D و E می‌تواند به ریخت و اندازه کوچک‌تر دانه مرتبط باشد. در شکل (۶)، منحنی مغناطومقاومت در میدان‌های گوناگون رسم شده است. نسبت مغناطومقاومت از کم کردن مقاومت در

تا نمونه D و سپس افزایش آن برای نمونه‌های E و F شده است. کاهش H_c با افزایش ضخامت را می‌توان به نبود پیوستگی و یکنواختی لایه NiFeCo در این بازه ضخامت یعنی از نمونه A تا D، نسبت داد. با افزایش بیش‌تر ضخامت لایه و رشد دانه‌ها در محدوده ضخامت نمونه‌های D تا F، ایجاد زبری و رشد جزایر سطحی می‌تواند سبب حرکت سخت‌تر دیواره‌های مغناطیسی شود؛ بنابراین، حرکت دیواره‌های مغناطیسی به انرژی بیش‌تری نیاز داشته و در میدان‌های بالاتری رخ می‌دهد. تغییرات وادارندگی، مغناطش اشباع و مغناطش باقی‌مانده نسبت به ضخامت این نمونه‌ها، رفتار مشابهی با لایه

جدول ۴- مقادیر گوناگون $\left(\frac{V}{I}\right)$ ، مقاومت الکتریکی ویژه و مقاومت سطحی نمونه‌های لایه نازک چندتایی.

[NiFeCo/Cu] ₃₀	[NiFeCo/Cu] ₆₀	چندلایه‌ای
۶۴	۸۴	مقدار $\frac{V}{I}$
۳۸۱	۲۹۰	مقاومت سطحی R_s (Ω/square)
۲۲۸	۱۷۴	مقاومت الکتریکی ویژه ρ ($\mu\Omega\text{-cm}$)

ولتاژ از دو ولت برای لایه فرومغناطیس به ۰/۴ ولت برای رسوب مس انجام شد. بدین ترتیب، بازه‌های زمانی ۱۵ و ۵ ثانیه برای لایه‌نشانی لایه فرومغناطیس و مس به تشکیل چندلایه‌ای [NiFeCo/Cu] منجر شد. تکرار فرآیند لایه‌نشانی به تعداد ۳۰ و ۶۰ مرتبه، دو نمونه [NiFeCo/Cu] ۳۰ و [NiFeCo/Cu] ۶۰ را ایجاد کرد.

مشخصه $\left(\frac{V}{I}\right)$ به دست آمده برای دست‌یابی به مقاومت سطحی R_s برحسب (Ω/square) است که بایستی از ضریب تصحیح وابسته به هندسه پروب و اندازه نمونه استفاده کرد. مقاومت الکتریکی ویژه برحسب ($\Omega\text{-cm}$) نیز با توجه به ضخامت لایه قابل محاسبه است. در جدول (۴) مقادیر گوناگون $\left(\frac{V}{I}\right)$ ، مقاومت الکتریکی ویژه و مقاومت سطحی نمونه‌ها مشخص است.

در شکل (۷) تغییرات مغناطوسمقاومت برای نمونه‌های [NiFeCo/Cu]₃₀ و [NiFeCo/Cu]₆₀ در یک میدان مغناطیسی تا ۱۶۰۰۰ Oe قابل مشاهده است. با افزایش شمار لایه‌های آلیاژ فرومغناطیس و ضخامت بیش‌تر لایه، کاهش مقاومت الکتریکی رخ می‌دهد که این موضوع با نتایج پژوهش‌های دیگر (۲۱) نیز هم‌خوانی دارد.

با توجه به این‌که مقاومت الکتریکی ناشی از برخورد الکترون‌های آزاد با نقص‌های شبکه است و هرچه مسیر

نمود میدان مغناطیسی R_0 از مقاومت در میدان مغناطیسی R_H به مقاومت در نبود میدان مغناطیسی تعریف می‌شود (رابطه ۸) (۲۱).

$$MR \text{ Ratio} = \frac{R_H - R_0}{R_0} = \frac{\Delta R}{R} \quad (۸)$$

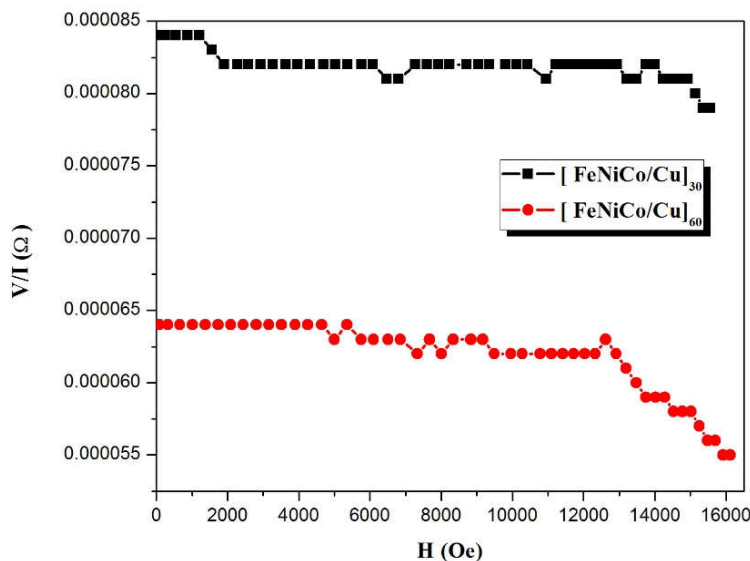
بیش‌ترین تغییر مقاومت برای نمونه دارای ۵۶ درصد اتمی نیکل است که تغییرات مقاومت از میدان حدود ۲۰۰۰ Oe آغاز شده و در میدان ۱۴۰۰۰ Oe به بیشینه رسیده است.

۳-۳- چندلایه‌ای NiFeCo/Cu

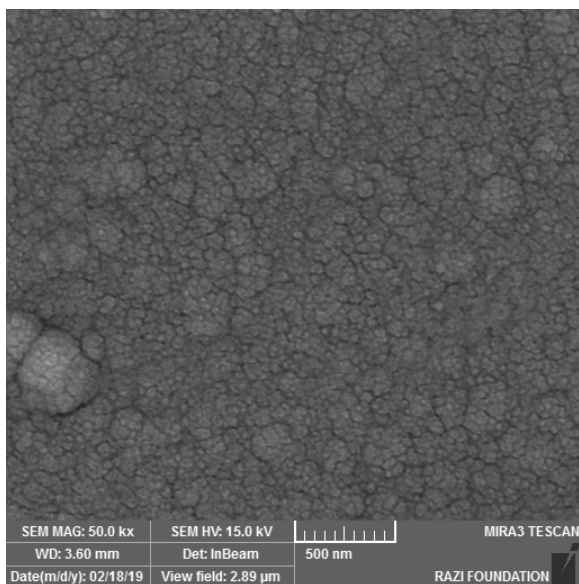
استفاده از محلول‌های مختلف برای ایجاد چندلایه‌ای که شامل عناصر آهن، نیکل و کبالت به همراه مس هستند، ممکن است به رسوب عنصر مس منجر شود. این اتفاق به دلیل نجیب‌تر بودن مس نسبت به سایر عناصر فرومغناطیس در حین احیای آن‌ها رخ می‌دهد؛ بنابراین، استفاده از بازه پتانسیل ویژه و همچنین در نظر گرفتن غلظت مناسب از مس می‌تواند به ایجاد چندلایه‌ای NiFeCo/Cu کمک کند.

در فرآیند الکتروانباشت تک حمام برای ایجاد پوشش چندلایه‌ای باید به ملاحظات مربوط به غلظت و به‌ویژه پتانسیل احیای آن‌ها توجه کرد تا ایجاد چندلایه‌ای مجزا امکان‌پذیر شود. همچنین، برای دستیابی به ساختار لایه لایه با ابعاد کنترل‌شده، تنظیم دقیق پتانسیل و جریان ضروری است. فرآیند الکتروانباشت با استفاده از دو حمام می‌تواند آزادی عمل بیشتری را در این زمینه فراهم کند؛ اما این روش مشکلاتی از جمله اکسایش لایه، تنظیم نادقیق ابعاد لایه، مشکلات ناشی از تعویض حمام‌ها و افزایش مدت زمان رسوب لایه‌ها را به همراه دارد.

با استفاده از محاسبات وزنی، ضخامت لایه تک Ni₆₆Fe₁₆Co₁₈ در حدود ۲۸۳ نانومتر برای مدت زمان شش دقیقه به دست آمد. کاهش مدت زمان از شش دقیقه به پانزده ثانیه می‌تواند لایه نیکل-آهن-کبالت را در لایه‌نشانی چندلایه‌ای با ضخامت حدود ۱۰ تا ۱۲ نانومتر ایجاد کند. همچنین، کاهش



شکل ۷- تغییرات $\frac{V}{I}$ نمونه‌های $[\text{NiFeCo/Cu}]_{30}$ و $[\text{NiFeCo/Cu}]_{60}$ با میدان مغناطیسی.



شکل ۸- تصویر میکروسکوپی الکترونی روبشی گسیل میدانی از لایه نازک چندتایی $[\text{NiFeCo/Cu}]_{60}$.

برای نمونه با 30° لایه فرومغناطیس، کاهش مغناطومقاومت در این میدان حدود شش درصد است، که در شکل (۹-الف) قابل مشاهده است.

منحنی‌های پسماند مغناطیسی هر دو نمونه با تعداد 30° و 60° لایه‌ای در شکل (۹-ب)، ارائه شده‌اند. همان‌گونه که

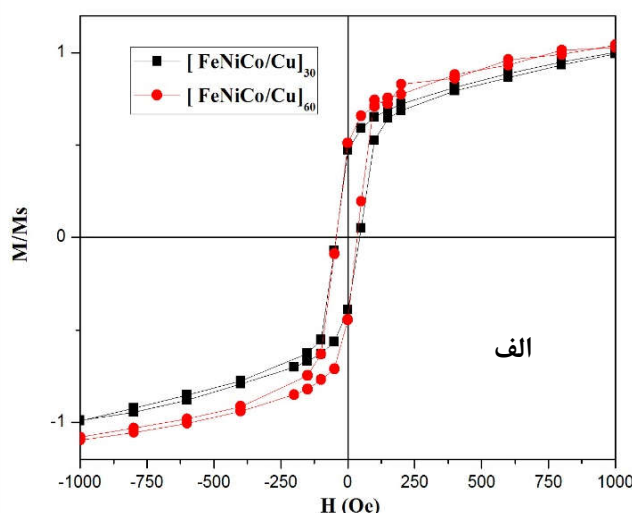
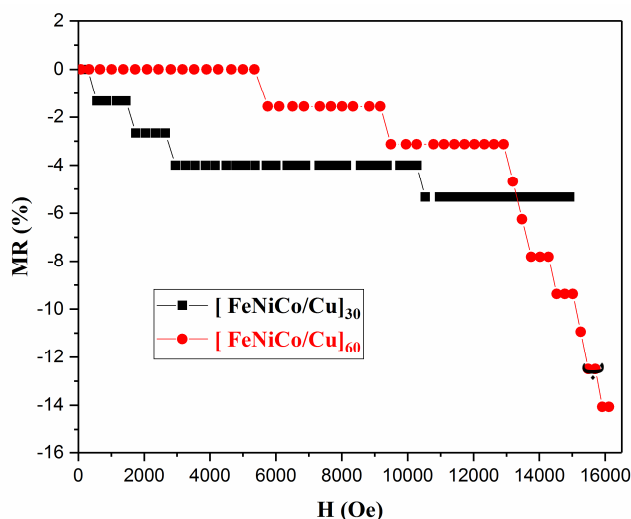
میانگین الکترون‌ها نقص کم‌تری داشته باشد، رسانایی بیش‌تر می‌شود، رابطه‌های (۹) و (۱۰) به‌طور نظری برای مقاومت الکتریکی لایه‌های نازک بیان شده‌اند (۲۱).

$$\rho = \rho_b \left(1 + \frac{3 l_0}{8 t} \right), t > l_0 \quad (9)$$

$$\rho = \rho_b \frac{4 l_0}{8 t} \left(\ln \frac{l_0}{t} + 0.42 \right)^{-1}, t \ll l_0 \quad (10)$$

که در روابط فوق، ρ_b مقاومت الکتریکی نمونه کپه‌ای و l_0 پوش آزاد میانگین است؛ بنابراین، با افزایش ضخامت لایه نازک، مقاومت ویژه الکتریکی کاهش می‌یابد. با توجه به این روابط، مقادیر مقاومت ویژه الکتریکی ρ به‌دست‌آمده برای لایه نازک نیکل-آهن-کبالت با نتایج پژوهش‌های دیگر (۲۲) نیز همخوانی دارد. البته باید توجه داشت که ریزساختار بس‌بلورین چندلایه‌ای، که در شکل (۸) نشان داده شده است، می‌تواند باعث افزایش مقاومت الکتریکی لایه شود. یکی از دلایل این افزایش، منحرف شدن الکترون‌ها به دلیل وجود مرزخانه‌ها است؛ در اینجا اندازه دانه‌ها در حدود 20° تا 30° نانومتر است.

تغییرات مغناطومقاومت لایه $[\text{NiFeCo/Cu}]_{60}$ ، کاهش حدود ۱۵ درصدی را در میدان 16000°Oe نشان می‌دهد، درحالی‌که



شکل ۹- الف- منحنی مغناطو مقاومت و ب- منحنی پسماند مغناطیسی چندلایه‌ای $[NiFeCo/Cu]_{30}$ و $[NiFeCo/Cu]_{60}$.

فرومغناطیسی $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ نخست میدان وادارندگی کم و سپس زیاد می‌شود. افزایش نیکل در لایه، باعث نرم‌تر شدن رفتار مغناطیسی می‌شود. فرآیند الکتروانباشت تک حمام برای ایجاد چندلایه‌ای $[NiFeCo/Cu]_{30}$ و $[NiFeCo/Cu]_{60}$ به‌کار گرفته شد. با افزایش شمار لایه‌ها، حوزه‌های مغناطیسی تشکیل شده و سبب کاهش میدان جوانه‌زنی و وادارندگی از $43/1$ به $38/4$ اورستد و افزایش نسبت مربعی شدن از $46/0$ به $51/0$ شد.

تشکر و سپاسگزاری

نویسندگان از حمایت و همکاری مسئولین و پرسنل محترم دانشکده مهندسی مواد دانشگاه صنعتی مالک اشتر شاهین‌شهر اصفهان قدردانی می‌کنند.

تضاد منافع

نویسندگان مقاله اذعان دارند هیچ نوع تضاد منافی با شخص، شرکت یا سازمانی برای این پژوهش ندارند.

مشخص است با افزایش شمار لایه‌ها، H_c از $43/1$ به $38/4$ اورستد کاهش می‌یابد و همچنین نسبت مربعی شدن Mr/Ms نیز از $46/0$ به $51/0$ افزایش می‌یابد.

پژوهش‌ها نشان داده‌اند که تعداد لایه‌های مغناطیسی می‌تواند بر رفتار مغناطیسی و مغناطو مقاومت لایه‌های نازک چندتایی تأثیرگذار باشد. با توجه به کوچک بودن ناهمسانگردی مغناطیسی عمود بر بس لایه‌ای‌ها، این اثر در مقایسه با افزایش انرژی مغناطو استاتیک در بس لایه‌ای‌های ضخیم‌تر، باعث شکل‌گیری حوزه‌های مغناطیسی می‌شود که در نتیجه، میدان جوانه‌زنی و به دنبال آن، وادارندگی کاهش می‌یابد.

۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش لایه‌های فرومغناطیسی $NiFeCo$ با ترکیبات اسمی $Ni_{56}Fe_{21}Co_{23}$ و $Ni_{66}Fe_{16}Co_{18}$ ، $Ni_{76}Fe_{11}Co_{13}$ به روش الکتروشیمیایی در شرایط $pH=3/1$ ، ولتاژ $2/2$ ولت و جریان 15 میلی‌آمپر لایه‌نشانی شدند. ترکیب شیمیایی با 66 درصد اتمی نیکل بیش‌ترین مغناطش اشباع و کم‌ترین ناهمسانگردی مغناطیسی را نشان داد. با افزایش زمان لایه‌نشانی برای تک‌لایه

واژه‌نامه

1. giant magnetoresistance (GMR)
2. energy dispersive spectroscopy (EDS)
3. vibration sample magnetometer (VSM)
4. four-point probe
5. Beer-Lambert law
6. volume fraction
7. squareness ratio

مراجع

1. Ghasemi A. Magnetic Ferrites and Related Nanocomposites: Elsevier; 2022. <https://doi.org/10.1016/C2019-0-05078-9>
2. Vitayaya O, Nehan PZZ, Munazat DR, Manawan MT, Kurniawan B. Magnetoresistance (MR) properties of magnetic materials. RSC Adv. 2024; 14(26):18617-45. <https://doi.org/10.1039/d4ra01989j>
3. Yekta PV, Ghasemi A, Sharifi EM. Magnetic and mechanical properties of cold-rolled permalloy. J Magn Magn Mater. 2018; 468: 155-63. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2018.07.088>
4. Qian X, Li C, Zheng M, Wang J, Huang H, Deng K. A renewable magnetic screen-printed electrode based on FeNi-loaded N-C nanotubes for omeprazole detection. Microchem J. 2024: 111044. <https://doi.org/10.1016/j.microc.2024.111044>
5. Miyazaki T, Oomori T, Sato F, Ishio S. Zero magnetostriction composition in Fe-Ni-Co ternary alloy system. J Magn Magn Mater. 1994; 129(2-3):L135-L6. [https://doi.org/10.1016/0304-8853\(94\)90102-3](https://doi.org/10.1016/0304-8853(94)90102-3)
6. Faltas M, Pillars J, Soule L, Meyerson ML, Rodriguez MA, Valdez NR, et al. Electrodeposited NiFeCo+ Tb and Dy for enhanced magnetostrictive properties and soft magnetism. Thin Solid Films. 2024; 800:140396. <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2024.140396>
7. Rasmussen FE, Ravnkilde JT, Tang PT, Hansen O, Bouwstra S. Electroplating and characterization of cobalt-nickel-iron and nickel-iron for magnetic microsystems applications. Sens Actuators A: Phys. 2001; 92(1-3):242-8. [https://doi.org/10.1016/S0924-4247\(01\)00556-8](https://doi.org/10.1016/S0924-4247(01)00556-8)
8. Hacıismailoglu MS, Alper M, Kockar H. Magnetoresistance of CoNiCu/Cu multilayers electrodeposited from electrolytes with different Ni ion concentrations. J Electrochem Soc. 2010; 157(10): D538. <https://doi.org/10.1149/1.3469583>
9. Kuru H, Kockar H, Alper M. Electrodeposited NiFeCu/Cu multilayers: effect of Fe ion concentration on properties. J Magn Magn Mater. 2015; 373:135-9. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2014.02.096>
10. Jarratt J, Barnard J. Hybrid NiFeCo-Ag/Cu multilayers: Giant magnetoresistance, structure, and magnetic studies. J Appl Phys. 1994; 76(10):6478-80. <https://doi.org/10.1063/1.358231>
11. Sze SM, Li Y, Ng KK. Physics of semiconductor devices: John Wiley & sons; 2021. <https://doi.org/10.1002/0470068329>
12. Vourlias G. Application of X-rays diffraction for identifying thin oxide surface layers on zinc coatings. Coat. 2020; 10(10):1005. <https://doi.org/10.3390/coatings10101005>
13. Gerward L. X-ray attenuation coefficients: current state of knowledge and availability. Radiat Phys Chem. 1993; 41(4-5):783-9. [https://doi.org/10.1016/0969-806X\(93\)90326-P](https://doi.org/10.1016/0969-806X(93)90326-P)
14. Del Mundo JT, Gomez ED, Gomez EW. Grazing-incidence X-ray scattering of plant epidermal cell wall. Advanced Biophysical Techniques for Polysaccharides Characterization: Elsevier; 2024. p. 221-34. <https://doi.org/10.1016/B978-0-443-14042-6.00009-9>
15. Harrington GF, Santiso J. Back-to-Basics tutorial: X-ray diffraction of thin films. J Electroceram. 2021; 47(4):141-63. <https://doi.org/10.1007/s10832-021-00263-6>
16. Akça B, Erzeneoğlu SZ. The mass attenuation coefficients, electronic, atomic, and molecular cross sections, effective atomic numbers, and electron densities for compounds of some biomedically important elements at 59.5 keV. Science and Technology of Nuclear Installations; 2014. <https://doi.org/10.1155/2014/901465>
17. Suryanarayana C, Norton MG, Suryanarayana C, Norton MG. X-rays and Diffraction: Springer; 1998. <https://doi.org/10.1007/978-1-4899-0148-4>
18. Paul S, Naimuddin S, Ghosh A. Electrochemical characterization of Ni-Co and Ni-Co-Fe for oxidation of methyl alcohol fuel with high energetic catalytic surface. J Fuel Chem Technol. 2014; 42(1):87-95(1). [https://doi.org/10.1016/S1872-5813\(14\)60012-8](https://doi.org/10.1016/S1872-5813(14)60012-8)
19. Askeland D. The Science and Engineering of Materials, Second SI Edition. Aeronaut J. 1991; 95(950):385-6. <https://doi.org/10.1007/978-1-4899-2895-5>
20. Sadashivaiah P, Sankarappa T, Sujatha T, Rawat R, Sarvanan P, Bhatnagar A. Structural, magnetic and electrical properties of Fe/Cu/Fe films. Vacuum. 2010; 85(3): 466-73. <https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2010.08.024>
21. Tumanski S. Thin film magnetoresistive sensors: CRC press; 2001. <https://doi.org/10.1201/9781420033243>
22. Nam H-S, Yokoshima T, Nakanishi T, Osaka T, Yamazaki Y, Lee DN. Microstructure of electroplated soft magnetic CoNiFe thin films. Thin solid films. 2001; 384(2):288-93. [https://doi.org/10.1016/S0040-6090\(00\)01856-3](https://doi.org/10.1016/S0040-6090(00)01856-3)