

Doktori (PhD) értekezés tézisei

**Fázis- és szerkezetátalakulások vizsgálata Si-Ge és Fe-Pd  
vékonyfilmekben**

Gulyás Szilvia

Témavezető: Dr. Katona Gábor



DEBRECENI EGYETEM  
Fizikai Tudományok Doktori Iskola  
Debrecen, 2024



# 1 Bevezetés

A vékonyfilmekben és kristályos anyagokban lejátszódó diffúziós folyamatok és szilárdtestreakciók vizsgálata a modern anyagtudomány élvonalába tartozó kutatási terület, mely fontos eredményekkel szolgál az alapkutatás számára, így hozzájárul a tudományos ismereteink bővítéséhez. Azonban ezek az eredmények nem csak alapkutatási szempontból fontosak és érdekesek, hiszen ezeknek az anyagoknak a gyakorlati felhasználása is rendkívül széleskörű. Alkalmazzák őket többek között napelem technológiában, félvezető iparban, információs technológiában, akkumulátor iparban, valamint különböző funkciókat ellátó bevonatokként. A vékonyfilmekben végbemenő folyamatok mellett, hogy szerepet játszanak az új anyagok kialakulása során, befolyásolják az eszközök működési tulajdonságait is. Tehát a kutatási eredmények segítségével lehetőség nyílik új, a korábbiaknál hatékonyabb, hosszabb élettartamú eszközök fejlesztésére, valamint az előállított anyagok tulajdonságainak bizonyos felhasználásokra történő optimalizálására is.

Az energia-újrahasznosítás, valamint az alternatív energiaforrások, így a velük kapcsolatos ismeretek napjainkban fontos szerepet töltenek be, hiszen mindennapi életünkben és a csúcstechnológiás ipari alkalmazásokban is egyre nő az igény a környezetkímélő energiaforrásokra. A hulladékenergia-újrahasznosítás egy lehetséges módja a termoelektromos generátorok (TEG) alkalmazása. A TEG-ek a Seebeck-effektus révén képesek a hőt közvetlenül elektromos energiává alakítani. Az energiaátalakítás hatásfokát egy jósági tényezővel ( $ZT$ ) jellemezzük. Annak érdekében, hogy minél hatékonyabb és széleskörben felhasználható eszközöket hozhassunk létre, olyan anyagokra van szükség melyeket megfelelően magas jósági tényező jellemez.

Egy jól ismert termoelektromos anyag a kristályos Si-Ge rendszer,

melynek kedvező tulajdonságairól számos kutatási eredmény beszámolt. Korábbi eredmények megmutatták, hogy a rendszerhez adott Au javítani tudja a rendszer termoelektromos tulajdonságait. A kapott eredmények azonban egyelőre nehezen reprodukálhatók és további vizsgálatokat igényel annak magyarázata, hogy a kedvező termoelektromos tulajdonságok megléte pontosan milyen szerkezeti jellemzőkre vezethető vissza, illetve hogyan hangolhatók az anyagban ezek a szerkezeti jellemzők.

Azok az anyagok, melyeket nagy mágneses anizotrópia, nagy koercitív tér, nagy telítési mágnesezettség, illetve jó korrózióállóság jellemez, megfelelőek különböző gyakorlati felhasználásokra, így használhatók többek között erős permanens mágnesként, mágneses adattárolásra, vagy spintronikai alkalmazásokra. Az alkalmazások szempontjából ideális mágneses tulajdonságok ezekben az anyagokban bizonyos fázisok meglétéhez köthetők. Ilyen mágneses anyagcsaládok például a Fe-Pt, Fe-Pd, Co-Pt és Fe-Ni rendszerek, melyekben a kedvező mágneses tulajdonságok megléte a rendezett  $L1_0$  fázis jelenlétéhez köthető. A fent felsoroltak közül a legaktívabban kutatott a Fe-Pt, azonban a Fe-Pd hasonlóan jó mágneses tulajdonságokkal rendelkezik, míg az előállítás költséghatékonyabb a Fe-Pt-hoz képest. Ezáltal a Fe-Pd rendszer vizsgálata szintén érdekes kutatási terület, a vizsgálatok során kapott eredmények segítségével fontos kérdéseket válaszolhatunk meg.

## 2 Célkitűzések

Doktori munkám során különböző összetételű és szerkezetű vékonyfilmeket készítettem és vizsgáltam. A vizsgálatok elsődleges célja a vékonyrétegekben lejátszódó diffúziós folyamatok, valamint fázisátalakulások megismerése, továbbá bizonyos tényezők, mint rétegvastagság, hőkezelési hőmérsékletek és idők, mintákhoz adott további komponensek a lejátszódó folyamatokra gyakorolt

hatásának megismerése és megértése volt. A kutatómunka során Si-Ge-Au és Fe-Pd vékonyfilmekben végeztem vizsgálatokat.

A kutatómunka során kitűzött célok az alábbiak voltak:

- Si-Ge-Au multirétegeken végzett vizsgálatok során megismerni és megérteni, hogy a Si-Ge rendszerhez adott Au hogyan viselkedik, azaz a hőkezelések után milyen szerkezetben van jelen, milyen a mélységi eloszlása a filmben, valamint, hogy milyen tényezők határozzák meg ezen viselkedését. A témával kapcsolatos korábbi irodalmi eredmények megmutatták, hogy a rendszert jellemző kedvező termoelektromos tulajdonságok összefüggnek a rendszerben lévő Au kiválásokkal. Ezen vizsgálatok során, bár mindig Au kiválásokat feltételeztek, ugyanakkor nem minden esetben javultak a termoelektromos jellemzők. Tehát annak megértése, hogy a termoelektromos szempontból kedvező Au kiválások létrejötte mitől függ a rendszerben további vizsgálatokat igényel, így a dolgozatban bemutatott vizsgálatok során szerzett információk segíthetik a korábbi irodalmi eredmények értelmezését.
- Fe-Pd alapú vékonyfilmekben hőkezelések hatására lejátszódó diffúziós folyamatok és fázisátalakulások megismerése. A kutatómunka célja volt megismerni, hogy Fe-Pt rendszernél a rendezett fázis előállítására az irodalomból ismert módszerek, így a rendszerhez adott különböző harmadik komponensek és/vagy pufferrétegek alkalmazása milyen folyamatokat indukálnak és milyen szerkezetek kialakulását idézik elő Fe-Pd mintákban, elősegítik-e a rendezett tetragonális fázis kialakulását ebben a rendszerben is.

### 3 Módszerek

Munkám során egyenáramú magnetronos porlasztással készítettem termikusan növesztett Si/SiO<sub>2</sub> hordozóra Si-Ge-Au multirétegeket, valamint különböző Fe-Pd alapú vékonyfilmeket, melyeket ezután vákuumban hőkezelttem. A hőkezelések során lejátszódó folyamatok megismeréséhez feltártam a minták mélységi profiljait másodlagos semlegesrész tömegspektrometriával (SNMS), és elvégeztem az intenzitás profilok összetétel profilá váló konverzióját, emellett szerkezeti vizsgálatokat végeztem röntgendiffrakciós módszerrel (XRD). A Si-Ge-Au multirétegek esetében elektronmikroszkópos (TEM, STEM, TSEM) felvételek is készültek, melyek által további szerkezeti ismereteket szerezhettünk a mintákról, valamint segítettek a folyamatok mélyebb megértésében.

### 4 Új tudományos eredmények

[T1.1] Si-Ge-Au multirétegek vizsgálata során megmutattam, hogy a rétegvastagságtól függően az Au eltérő viselkedést mutat. Míg kisebb Au névleges rétegvastagság (0.5 nm) esetén a 440°C hőmérsékletű hőkezelések során az Au túlnyomórészt szegregál a vékonyfilm felszínére, miközben a film belsejében csak kevés kis méretű Au kiválás marad, addig nagyobb névleges Au rétegvastagság (0.75 nm) alkalmazása esetén az Au többnyire a réteg térfogatában marad kiválások formájában és csak kismértékű Au szegregáció történik. Ez az eredmény eltér az irodalomban szereplő modellektől, melyekben a térfogatban megjelenő Au kiválásokat feltételezték.

A tézisponthoz kapcsolódó publikáció: **C[1]**

[T1.2] Megmutattam, hogy a Si-Ge-Au multirétegekben az alkalmazott Au rétegvastagságok esetén az Au viselkedése független a kiindulási Si és Ge rétegvastagságoktól és ennek felhasználásával

magyarázatot adtam az Au viselkedésére. Az Au rétegek a kis nominális rétegvastagságok (0.5 és 0.75 nm) miatt nem folytonosan épülnek a gyártás során, emiatt szigeteket képeznek a réteghatárokon. A kisebb Au rétegvastagságok esetén (0.5 nm) ezen szigetek nagy részének mérete nem éri el a nukleációs limitet, így az Au szigetek szegregációs forrássá válnak. Abban az esetben viszont, ha a kiindulási Au rétegvastagság nagyobb (0.75 nm), a szigetek nagy részének mérete meghaladja a nukleációs limitet, és az Au szigetek nukleációs magként viselkednek, ezáltal helyben keletkeznek valamint növekednek Au kiválások a réteg belsejében.

A tézisponthoz kapcsolódó publikáció: **C[1]**

**[T2.1]** Fe/Pd birétegek vizsgálata során megmutattam, hogy a rendszerben alacsony hőmérsékletű hőkezelés hatására mindkét rétegsorrend esetén ( $\text{SiO}_2/\text{Fe}/\text{Pd}$  és  $\text{SiO}_2/\text{Pd}/\text{Fe}/\text{Pd}$ )  $\text{FePd}_3$  fázis alakul ki, amely a  $\text{SiO}_2/\text{Pd}/\text{Fe}/\text{Pd}$  szerkezetű minta esetében hosszú idejű hőkezelés után rendezett lapcentrált köbös  $L1_2$  fázist alkot. Megmutattam, hogy Mo pufferréteg alkalmazása esetén alacsony hőmérsékletű hőkezelés során a rendszerben az eredeti birétegtől eltérően  $\text{FePd}$  fázis alakul ki, amely a  $\text{SiO}_2/\text{Mo}/\text{Pd}/\text{Fe}/\text{Pd}$  rétegsorrendű mintában rendezett tetragonális  $L1_0$  szerkezetet alkot, amely fázis már jelentősen rövidebb idejű hőkezelés után megjelenik.

A tézisponthoz kapcsolódó publikációk: **C[2],C[3]**

**[T2.2]** Megmutattam, hogy a Fe-Pd rendszerhez Au köztes réteget adva a hőkezelések során továbbra is a  $\text{FePd}_3$  fázis alakul ki, amely mindkét rétegsorrend esetén ( $\text{SiO}_2/\text{Fe}/\text{Au}/\text{Pd}$  és  $\text{SiO}_2/\text{Pd}/\text{Au}/\text{Fe}/\text{Pd}$ )  $L1_2$  rendezett szerkezetet alkot és ez a rendezett fázis már rövid hőkezelési idő után létrejön. A köztes hőkezelések során kialakul egy AuPd szilárdoldat fázis, mely a hosszabb hőkezelések során eltűnik és a végső szerkezetben nincs jelen.

A tézisponthoz kapcsolódó publikáció: **C[3]**

**[T2.3]** Megvizsgáltam a Fe-Pd-Au rendszerben hőkezelések során lejátszódó folyamatokat pufferréteg jelenlétében is. A vizsgálatok eredményei alapján megállapítottam, hogy a Fe-Pd-Au rendszerben Mo és W pufferrétegek alkalmazása esetén továbbra is  $\text{FePd}_3$  fázis alakul ki, amely egy rétegsorrend kivételével rendezett  $L1_2$  szerkezetet alkot, tehát az Au réteg kialakuló fázisra gyakorolt hatása erősebb a pufferrétegek hatásával szemben a rendszerben.

A tézisponthoz kapcsolódó publikáció: **C[3]**

**[T2.4]** Megmutattam, hogy a Fe-Pd rendszerhez Ag köztes réteget adva a biréteg szerkezettel ellentétben mindkét rétegsorrend esetében ( $\text{SiO}_2/\text{Fe}/\text{Ag}/\text{Pd}$  és  $\text{SiO}_2/\text{Pd}/\text{Ag}/\text{Fe}/\text{Pd}$ ) rendezett tetragonális  $L1_0$ -FePd fázis alakul ki. A rendezettség a  $\text{SiO}_2/\text{Pd}/\text{Ag}/\text{Fe}/\text{Pd}$  mintában csak kissé magasabb hőmérsékletű hőkezelés után jelenik meg és csak kismértékű. A rendszerben hőkezelések hatására egy AgPd szilárdoldat fázis is létrejön, mely az AuPd fázissal ellentétben a végül kialakuló szerkezetben is jelen van.

A tézisponthoz kapcsolódó publikáció: **C[2]**

**[T2.5]** Szemcsehatár diffúzió következtében történő szemcsehatár elmozdulási jelenségekkel (DIGM, GBDIREAC) magyarázatot adtam a Fe-Pd rendszerben alacsony hőmérsékleteken bekövetkező diffúziós keveredésre, valamint a lejátszódó fázisátalakulásokra. A kialakuló fázisok különbözőségét a minták eltérő textúrájára és feszültségállapotára vezettem vissza.

A tézisponthoz kapcsolódó publikációk: **C[2],C[3]**

## Az értekezés témájában megjelent közlemények

**C[1] S. Gulyás, G. L. Katona, G. Csiszár, J. J. Tomán, C. Cserháti, Z. Erdélyi,** “The effect of self-organization during deposition on the segregation behaviour of Au in the Si-Ge-Au nano-multilayer thermoelectric generator system,” *Materials Characterization*, vol. 209, p. 113699, 2024.

**C[2] S. Gulyás, G. L. Katona,** “Structural and phase transformations in Fe-Pd-Ag layered thin films by grain boundary diffusion,” *Physica Scripta*, vol. 99, no. 9, p. 095970, 2024.

**C[3] S. Gulyás, G. L. Katona,** “Effect of Mo and W underlayers on ordered phase formation in Fe-Au-Pd multilayer thin films at low temperatures,” *Heliyon*, vol. 10, no. 12, p. e32865, 2024.

## További közlemények

1. G. L. Katona and **S. Gulyas**, “Grain Boundary Diffusion Dominated Mixing and Solid State Reactions in Magnetic Thin Films,” in *Modern Magnetic and Spintronic Materials* (A. Kaidatzis, S. Sidorenko, I. Vladymyrskyi, and D. Niarchos, eds.), pp. 145–162, Dordrecht: Springer Netherlands, 2020.

2. I. O. Kruhlov, O. V. Shamis, N. Y. Schmidt, M. V. Karpets, **S. Gulyas**, E. Hadjixenophontos, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, G. Schmitz, M. Albrecht, and I. A. Vladymyrskyi, “Structural phase transformations in annealed Pt/Mn/Fe trilayers,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 32, no. 36, p. 365404, 2020.

3. I. O. Kruhlov, O. Shamis, N. Schmidt, **S. Gulyas**, R. Lawitzki, A. Burmak, S. Konorev, G. Katona, G. Schmitz, M. Albrecht, and I. Vladymyrskiy, “Thermally-induced phase transitions in Pt/Tb/Fe trilayers,” *Thin Solid Films*, vol. 709, p. 138134, 2020.
4. P. V. Makushko, M. N. Shamis, N. Y. Schmidt, I. E. Kotenko, **S. Gulyas**, G. L. Katona, T. I. Verbytska, D. L. Beke, M. Albrecht, and I. M. Makogon, “Formation of ordered L1<sub>0</sub>-FePt phase in FePt-Ag thin films,” *Applied Nanoscience*, vol. 10, no. 12, pp. 4809–4816, 2020.
5. O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, **S. Gulyas**, D. L. Beke, M. Albrecht, and I. A. Vladymyrskiy, “Phase transformations in Pt/Fe bilayers during post annealing probed by resistometry,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 31, no. 28, p. 285401, 2019.

## Konferencia-előadások

1. **S. Gulyas**, O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, D. L. Beke, M. Albrecht, I. A. Vladymyrskiy: *FePt vékonyrétegek vizsgálata*, XXII. Tavasz Szél Konferencia, Debrecen 2019. május 3-5.
2. **S. Gulyas**, I. O. Kruhlov, E. Hadjixenophontos, M. V. Karpets, G. Schmitz, O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, D. L. Beke, M. Albrecht, I. A. Vladymyrskiy: *Mágneses vékonyfilmek vizsgálata*, Magyar Fizikus Vándorgyűlés, Sopron, 2019. augusztus 21-24.

3. **S. Gulyas**, O. Kruhlov, O. V. Shamis, , N. Y. Schmidt, M. V. Karpets, E. Hadjixenophontos, , A. P. Burmak,. S. I. Sidorenko, G. L. Katona, R. Lawitzki, S. I. Konorev, G. Schmitz, M. Albrecht, I. A. Vladymyrskyi: *Investigation of Fe-Pt based thin films*, ICTF-JVC, Budapest, 2020. november 22-26.

## **Poszter-előadás**

**S. Gulyas**, G. L. Katona: *Investigation of Fe-Pd based thin films*, 11<sup>th</sup> International Conference on Diffusion in Materials (DIMAT), Debrecen, 2021. július 5-9.



Nyilvántartási szám: DEENK/437/2024.PL  
Tárgy: PhD Publikációs Lista

Jelölt: Gulyás Szilvia

Doktori Iskola: Fizikai Tudományok Doktori Iskola

MTMT azonosító: 10068677

## A PhD értekezés alapjául szolgáló közlemények

### Idegen nyelvű tudományos közlemények külföldi folyóiratban (3)

- Gulyás, S.**, Katona, G.: Effect of Mo and W underlayers on ordered phase formation in Fe-Au-Pd multilayer thin films at low temperatures.  
*Heliyon*. 10 (12), 1-12, 2024. ISSN: 2405-8440.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.heliyon.2024.e32865>  
IF: 3.4 (2023)
- Gulyás, S.**, Katona, G.: Structural and phase transformations in Fe-Pd-Ag layered thin films by grain boundary diffusion.  
*Phys. Scr.* 99 (9), 1-12, 2024. ISSN: 0031-8949.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1402-4896/ad6d9f>  
IF: 2.6 (2023)
- Gulyás, S.**, Katona, G., Csiszár, G., Tomán, J., Cserhádi, C., Erdélyi, Z.: The effect of self-organization during deposition on the segregation behaviour of Au in the Si-Ge-Au nano-multilayer thermoelectric generator system.  
*Mater. Charact.* 209, 1-13, 2024. ISSN: 1044-5803.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.matchar.2024.113699>  
IF: 4.8 (2023)

## További közlemények

### Idegen nyelvű, külföldi könyvrészletek (1)

- Katona, G., **Gulyás, S.**: Grain Boundary Diffusion Dominated Mixing and Solid State Reactions in Magnetic Thin Films.  
In: Modern Magnetic and Spintronic Materials. Eds.: Kaidatzis, A., Sidorenko, S., Vladymyrskiy, I., Niarchos, D, Springer, Dordrecht, 145-162, 2020, (NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics, ISSN 1874-6535) ISBN: 9789402420340





Idegen nyelvű tudományos közlemények külföldi folyóiratban (4)

5. Makushko, P. V., Shamis, M. N., Schmidt, N. Y., Kotenko, I. E., **Gulyás, S.**, Katona, G., Verbytska, T. I., Beke, D. L., Albrecht, M., Makogon, I. M.: Formation of ordered L10-FePt phase in FePt-Ag thin films.  
*Appl Nanosci.* 10 (12), 4809-4816, 2020. ISSN: 2190-5509.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1007/s13204-020-01552-2>  
IF: 3.674
6. Kruhlov, I. O., Shamis, O. V., Schmidt, N. Y., Karpets, M. V., **Gulyás, S.**, Hadjixenophontos, E., Burmak, A. P., Sidorenko, S. I., Katona, G., Schmitz, G., Albrecht, M., Vladymyrskyi, I. A.: Structural phase transformations in annealed Pt/Mn/Fe trilayers.  
*J. Phys.-Condes. Matter.* 32 (36), 1-9, 2020. ISSN: 0953-8984.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/ab9269>  
IF: 2.333
7. Kruhlov, I. O., Shamis, O. V., Schmidt, N. Y., **Gulyás, S.**, Lawitzki, R., Burmak, A. P., Konorev, S. I., Katona, G., Schmitz, G., Albrecht, M., Vladymyrskyi, I. A.: Thermally-induced phase transitions in Pt/Tb/Fe trilayers.  
*Thin Solid Films.* 709, 1-7, 2020. ISSN: 0040-6090.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2020.138134>  
IF: 2.183
8. Shamis, O. V., Safonova, N. Y., Voron, M. M., Burmak, A. P., Sidorenko, S. I., Katona, G., **Gulyás, S.**, Beke, D. L., Albrecht, M., Vladymyrskyi, I. A.: Phase transformations in Pt/Fe bilayers during post annealing probed by resistometry.  
*J. Phys.-Condes. Matter.* 31 (28), 1-7, 2019. ISSN: 0953-8984.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/ab169c>  
IF: 2.707

**A közlő folyóiratok összesített impakt faktora: 21,697**

**A közlő folyóiratok összesített impakt faktora (az érkekezés alapjául szolgáló közleményekre): 10,8**

A DEENK a Jelölt által az iDEa Tudóstérbe feltöltött adatok bibliográfiai és tudomány-metriai ellenőrzését a tudományos adatbázisok és a Journal Citation Reports Impact Factor lista alapján elvégezte.

Debrecen, 2024.08.26.





Short thesis for the degree of doctor of philosophy (PhD)

**Investigation of phase and structural transformations in Si-Ge  
and Fe-Pd thin films**

by Szilvia Gulyás

Supervisor: Dr. Gábor Katona



University of Debrecen  
Doctoral School of Physics  
Debrecen, 2024



# 1 Introduction

Investigation of diffusion processes and solid state reactions in thin films is one of the most researched areas of nowadays materials science. These investigations do not only provide important information for fundamental science but there is also widespread technical application of these materials. They are used for example in solar cell technology, semiconductor industry, information technology, battery industry, and they are also used for different coatings in different applications. The processes in the thin films play important role during the formation of new materials and can also influence the operating properties of the devices. Therefore, using the results of the researches makes it possible to develop new, long-life, and more efficient devices. And it can be also possible to optimize the properties of these devices for specific applications.

Utilizing waste energy and alternative source of energy are becoming increasingly important nowadays. A possible solution for waste energy utilization is the application of thermoelectric generators (TEG). TEGs can transform heat directly to electric power via the Seebeck effect. The efficiency of the transformation is characterized by the figure of merit ( $ZT$ ). In order to producing more effectively operating and also widespread used devices, materials characterized by appropriately high  $ZT$  values are needed. A well-known thermoelectric material is the crystalline Si-Ge system. There are many publications reporting on the favourable thermoelectric properties of this system. However, the currently available results are difficult to reproduce. It still needs more investigations to explain what is the structural origin of the favourable thermoelectric properties and how can these structural properties be tuned in the material.

Materials characterized by high magnetic anisotropy, high coercive field, high saturation magnetization and good corrosion

resistance are appropriate for different technical applications; e.g. they can be utilized for permanent magnetic applications, magnetic recording or spintronics. The (from application point of view) ideal properties of these materials are usually related to the presence of certain phases. Example for such systems are Fe-Pt, Fe-Pd, Co-Pt and Fe-Ni, in which the favourable magnetic properties are related to the presence of ordered  $L1_0$  phase. From the list above Fe-Pd is the most researched but the Fe-Pd also exhibits similarly good magnetic properties and at the same time the production of Fe-Pd is more cost effective compared to the Fe-Pt. Because of this investigation of the Fe-Pd system is also an interesting research field and with the results obtained during investigations we can answer important questions.

## 2 Objective

During my doctoral research I have prepared and investigated thin films of different composition and structure. The aim was to study and understand the diffusion processes and phase transformations in thin films. Besides these a further goal was to understand the influence of different parameters (e.g. film thickness, annealing temperatures and time, additional components) on the processes. During the research I have performed investigations on Si-Ge-Au and Fe-Pd thin films with the following aim:

- Study and understand the role of Au in Si-Ge-Au multilayered thin films; i.e. in what structure the Au appears in the system after annealing and what is the depth distribution of it. Previously published results always showed that the good thermoelectric properties of the system are connected to the presence of Au precipitates. Although these studies always assumed Au-rich volume, the thermoelectric properties did not improved in every case. Therefore clarifying the factors

determining the formation of the thermoelectrically favourable Au precipitates in the system needs more investigation. Thus the results collected during the investigation can help us in the interpretation of previously published results.

- Investigate the diffusion processes and phase transformations in Fe-Pd based thin films during low temperature annealings. The aim of the research was to investigate how the methods such as addition of third components and/or buffer layers, successfully used in the Fe-Pt system for forming the ordered phase, work in the Fe-Pd system. We aimed to investigate and understand the underlying processes and whether they promote the formation of the ordered tetragonal FePd phase.

### **3 Methods**

During the research I have fabricated Si-Ge-Au multilayers and different Fe-Pd based thin films on thermally oxidized Si/SiO<sub>2</sub> substrates by DC magnetron sputtering. After deposition the samples were annealed in vacuum. To study the processes took place during annealings samples were characterized by composition depth profiling using Secondary Neutral Mass Spectrometry (SNMS). I have converted the intensity profiles into composition profiles. I have also studied the structural properties of the films via X-Ray Diffraction (XRD). In case of Si-Ge-Au films electron microscopy (TEM, STEM, TSEM) imaging was also performed which gave further structural information about the samples and also helped us in a deeper understanding of the processes.

## 4 New scientific results

[T1.1] I have shown during the investigation of Si-Ge-Au multilayers that the Au behaves differently depending on its layer thickness. While in case of smaller nominal Au layer thickness (0.5 nm) the Au segregates to the surface of the thin film during annealing at 440°C, with only a few small Au precipitates remaining in the volume of the film, in case of the sample with thicker Au layers (0.75 nm) the Au remains mostly in the volume of the film forming local precipitations and only minor Au segregation occurs. This result differs from assumptions of Au precipitates in the volume found in the literature. Publication connected to this thesis point: C[1]

[T1.2] My results have shown that in Si-Ge-Au multilayers the behaviour of the Au is practically independent from the individual layer thicknesses of the Si and Ge layers and based on this I interpreted the behaviour of Au. Because of the small nominal individual layer thicknesses (0.5 and 0.75 nm) the Au layers are not continuous after deposition and they form clusters at the interfaces. In case of smaller Au thickness (0.5 nm) the size most of these islands does not reach the nucleation limit therefore the Au islands dissolve and become a source of segregation. In contrast to this in case of thicker nominal Au layers (0.75 nm) the probability that the size of the formed clusters is above of the nucleation limit is higher and this way the Au islands become nucleation seeds and local nucleation and growth occur in the volume of the film.

Publication connected to this thesis point: C[1]

[T2.1] I have shown that in Fe/Pd bilayers low temperature annealing results in the formation the FePd<sub>3</sub> phase in case of both stacking order (SiO<sub>2</sub>/Fe/Pd and SiO<sub>2</sub>/Pd/Fe/Pd). The phase has L1<sub>2</sub> face centered cubic ordered structure in case of sample SiO<sub>2</sub>/Pd/Fe/Pd. I have shown that applying Mo buffer layer to the Fe/Pd bilayer

samples results in the formation of FePd phase during low temperature annealing. In case of sample SiO<sub>2</sub>/Mo/Pd/Fe/Pd the phase has ordered tetragonal L1<sub>0</sub> structure and the ordering is already visible even after significantly shorter annealing time.

Publications connected to this thesis point: **C[2],C[3]**

**[T2.2]** I have shown that adding a Au intermediate layer to the Fe-Pd system still results in the formation of FePd<sub>3</sub> phase during annealings which has L1<sub>2</sub> ordered structure in case of both stacking order (SiO<sub>2</sub>/Fe/Au/Pd and SiO<sub>2</sub>/Pd/Au/Fe/Pd). The ordered phase appears after even short annealing. During intermediate annealings a AuPd solid solution phase forms which disappears during the longer annealings and does not appear in the final structure.

Publication connected to this thesis point: **C[3]**

**[T2.3]** I have also investigated the processes in Fe-Au-Pd system in the presence of buffer layer. Based on the results I have concluded that after applying Mo and W underlayers in the Fe-Au-Pd system the FePd<sub>3</sub> phase keeps forming which has L1<sub>2</sub> ordered structure except for one stacking order. So the effect of the Au layer on the forming phase is dominant over the effect of the buffer layers.

Publication connected to this thesis point: **C[3]**

**[T2.4]** I have shown that adding a Ag intermediate layer to the Fe-Pd system results in the formation of L1<sub>0</sub>-FePd phase for both stacking order (SiO<sub>2</sub>/Fe/Ag/Pd and SiO<sub>2</sub>/Pd/Ag/Fe/Pd) contrary to the bilayer structure. In case of SiO<sub>2</sub>/Pd/Ag/Fe/Pd the ordering is minor and appears only after slightly higher temperature annealing. During the annealings a AgPd solid solution phase also forms which contrary to the AuPd phase remains in the final structure of the system.

Publication connected to this thesis point: **C[2]**

**[T2.5]** I have interpreted the diffusion processes and phase transformations in the Fe-Pd system at low temperatures with diffusion induced grain boundary motion processes (DIGM, GBDIREAC). I have explained the different forming phases with the different texture and different stress states of the samples.

Publication connected to this thesis point: **C[2],C[3]**

## Publications on the results of the dissertation

**C[1]** **S. Gulyás**, G. L. Katona, G. Csiszár, J. J. Tomán, C. Cserháti, and Z. Erdélyi, “The effect of self-organization during deposition on the segregation behaviour of Au in the Si-Ge-Au nano-multilayer thermoelectric generator system,” *Materials Characterization*, vol. 209, p. 113699, 2024.

**C[2]** **S. Gulyás** and G. L. Katona, “Structural and phase transformations in Fe-Pd-Ag layered thin films by grain boundary diffusion,” *Physica Scripta*, vol. 99, no. 9, p. 095970, 2024.

**C[3]** **S. Gulyás** and G. L. Katona, “Effect of Mo and W underlayers on ordered phase formation in Fe-Au-Pd multilayer thin films at low temperatures,” *Heliyon*, vol. 10, no. 12, p. e32865, 2024.

## Other publications

1. G. L. Katona and **S. Gulyas**, “Grain Boundary Diffusion Dominated Mixing and Solid State Reactions in Magnetic Thin Films,” in *Modern Magnetic and Spintronic Materials* (A. Kaidatzis, S. Sidorenko, I. Vladymyrskyi, and D. Niarchos, eds.), pp. 145–162, Dordrecht: Springer Netherlands, 2020.

2. I. O. Kruhlov, O. V. Shamis, N. Y. Schmidt, M. V. Karpets, **S. Gulyas**, E. Hadjixenophontos, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, G. Schmitz, M. Albrecht, and I. A. Vladymyrskyi, “Structural phase transformations in annealed Pt/Mn/Fe trilayers,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 32, no. 36, p. 365404, 2020.

3. I. Kruhlov, O. Shamis, N. Schmidt, **S. Gulyas**, R. Lawitzki, A. Burmak, S. Konorev, G. Katona, G. Schmitz, M. Albrecht, and

I. Vladymyrskiy, “Thermally-induced phase transitions in Pt/Tb/Fe trilayers,” *Thin Solid Films*, vol. 709, p. 138134, 2020.

4. P. V. Makushko, M. N. Shamis, N. Y. Schmidt, I. E. Kotenko, **S. Gulyas**, G. L. Katona, T. I. Verbytska, D. L. Beke, M. Albrecht, and I. M. Makogon, “Formation of ordered L1<sub>0</sub>-FePt phase in FePt-Ag thin films,” *Applied Nanoscience*, vol. 10, no. 12, pp. 4809–4816, 2020.

5. O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, **S. Gulyas**, D. L. Beke, M. Albrecht, and I. A. Vladymyrskiy, “Phase transformations in Pt/Fe bilayers during post annealing probed by resistometry,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 31, no. 28, p. 285401, 2019.

## Oral presentations

1. **S. Gulyas**, O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, D. L. Beke, M. Albrecht, I. A. Vladymyrskiy: *FePt vékonyrétegek vizsgálata* (in Hungarian), XXII. Tavaszi Szél Konferencia, Debrecen 3-5. May 2019

2. **S. Gulyas**, I. O. Kruhlov, E. Hadjixenophontos, M. V. Karpets, G. Schmitz, O. V. Shamis, N. Y. Safonova, M. M. Voron, A. P. Burmak, S. I. Sidorenko, G. L. Katona, D. L. Beke, M. Albrecht, I. A. Vladymyrskiy: *Mágneses vékonyfilmek vizsgálata* (in Hungarian), Magyar Fizikus Vándorgyűlés, Sopron, 2019. 21-24. August 2019.

3. **S. Gulyas**, O. Kruhlov, O. V. Shamis, , N. Y. Schmidt, M. V. Karpets, E. Hadjixenophontos, , A. P. Burmak,. S. I. Sidorenko, G. L. Katona, R. Lawitzki, S. I. Konorev, G. Schmitz, M. Albrecht, I. A. Vladymyrskyi: *Investigation of Fe-Pt based thin films*, ICTF-JVC, Budapest, 22-26. november 2020

## **Poster presentation**

**S. Gulyas**, G. L. Katona: *Investigation of Fe-Pd based thin films*, 11<sup>th</sup> International Conference on Diffusion in Materials (DIMAT), Debrecen, 5-9. July 2021.



Registry number: DEENK/437/2024.PL  
Subject: PhD Publication List

Candidate: Szilvia Gulyás  
Doctoral School: Doctoral School of Physics  
MTMT ID: 10068677

### List of publications related to the dissertation

#### Foreign language scientific articles in international journals (3)

1. **Gulyás, S.**, Katona, G.: Effect of Mo and W underlayers on ordered phase formation in Fe-Au-Pd multilayer thin films at low temperatures.  
*Heliyon*. 10 (12), 1-12, 2024. ISSN: 2405-8440.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.heliyon.2024.e32865>  
IF: 3.4 (2023)
2. **Gulyás, S.**, Katona, G.: Structural and phase transformations in Fe-Pd-Ag layered thin films by grain boundary diffusion.  
*Phys. Scr.* 99 (9), 1-12, 2024. ISSN: 0031-8949.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1402-4896/ad6d9f>  
IF: 2.6 (2023)
3. **Gulyás, S.**, Katona, G., Csiszár, G., Tomán, J., Cserháti, C., Erdélyi, Z.: The effect of self-organization during deposition on the segregation behaviour of Au in the Si-Ge-Au nano-multilayer thermoelectric generator system.  
*Mater. Charact.* 209, 1-13, 2024. ISSN: 1044-5803.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.matchar.2024.113699>  
IF: 4.8 (2023)

### List of other publications

#### Foreign language international book chapters (1)

4. Katona, G., **Gulyás, S.**: Grain Boundary Diffusion Dominated Mixing and Solid State Reactions in Magnetic Thin Films.  
In: Modern Magnetic and Spintronic Materials. Eds.: Kaidatzis, A., Sidorenko, S., Vladymyrskiy, I., Niarchos, D, Springer, Dordrecht, 145-162, 2020, (NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics, ISSN 1874-6535) ISBN: 9789402420340





Foreign language scientific articles in international journals (4)

5. Makushko, P. V., Shamis, M. N., Schmidt, N. Y., Kotenko, I. E., **Gulyás, S.**, Katona, G., Verbytska, T. I., Beke, D. L., Albrecht, M., Makogon, I. M.: Formation of ordered L10-FePt phase in FePt-Ag thin films.  
*Appl Nanosci.* 10 (12), 4809-4816, 2020. ISSN: 2190-5509.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1007/s13204-020-01552-2>  
IF: 3.674
6. Kruhlov, I. O., Shamis, O. V., Schmidt, N. Y., Karpets, M. V., **Gulyás, S.**, Hadjixenophontos, E., Burmak, A. P., Sidorenko, S. I., Katona, G., Schmitz, G., Albrecht, M., Vladymyrskiy, I. A.: Structural phase transformations in annealed Pt/Mn/Fe trilayers.  
*J. Phys.-Condes. Matter.* 32 (36), 1-9, 2020. ISSN: 0953-8984.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/ab9269>  
IF: 2.333
7. Kruhlov, I. O., Shamis, O. V., Schmidt, N. Y., **Gulyás, S.**, Lawitzki, R., Burmak, A. P., Konorev, S. I., Katona, G., Schmitz, G., Albrecht, M., Vladymyrskiy, I. A.: Thermally-induced phase transitions in Pt/Tb/Fe trilayers.  
*Thin Solid Films.* 709, 1-7, 2020. ISSN: 0040-6090.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2020.138134>  
IF: 2.183
8. Shamis, O. V., Safonova, N. Y., Voron, M. M., Burmak, A. P., Sidorenko, S. I., Katona, G., **Gulyás, S.**, Beke, D. L., Albrecht, M., Vladymyrskiy, I. A.: Phase transformations in Pt/Fe bilayers during post annealing probed by resistometry.  
*J. Phys.-Condes. Matter.* 31 (28), 1-7, 2019. ISSN: 0953-8984.  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/ab169c>  
IF: 2.707

**Total IF of journals (all publications): 21,697**

**Total IF of journals (publications related to the dissertation): 10,8**

The Candidate's publication data submitted to the iDEa Tudóstér have been validated by DEENK on the basis of the Journal Citation Report (Impact Factor) database.

26 August, 2024

