

PACS numbers: 72.25.-b, 72.80.Tm, 73.50.Jt, 75.47.-m, 81.15.Jj, 82.80.Pv, 85.75.-d

Електропровідність і магнеторезистивні властивості шаруватих структур на основі Fe та SiO

І. М. Пазуха¹, Р. М. Петренко¹, Ю. О. Шкурдода¹, А. М. Логвинов¹,
О. В. Пилипенко¹, В. В. Щоткін¹, С. Р. Долгов-Гордійчук¹,
Л. В. Дехтярук²

¹Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2,
40007 Суми, Україна

²Харківський національний університет будівництва та архітектури,
вул. Сумська, 40,
61002 Харків, Україна

Представлено експериментальні результати щодо електропровідності та магнеторезистивних властивостей шаруватих структур на основі Fe та SiO, одержаних методом пошарового електронно-променевого осадження у вакуумі. Показано, що величина питомого опору залежить від ефективної товщини шарів Fe, що зумовлено розмірними ефектами у плівкових матеріалах. Магнеторезистивний ефект для свіжосконденсованих і відпалених шаруватих структур має анізотропний характер, а його величина не перевищує 0,1% за кімнатної температури.

The experimental results on electrical conductivity and magnetoresistive properties of layered structures based on Fe and SiO prepared by layer-by-layer electron-beam condensation method are presented. As demonstrated, the value of resistivity depends on the effective thickness of Fe layers. It is associated with the size-effect appearance in thin-film materials. For as-deposited and annealed structures, the magnetoresistive effect has anisotropic character, and its value does not exceed 0.1% at room temperature.

Ключові слова: пошарова конденсація, електропровідність, термічний коефіцієнт опору, магнеторезистивні властивості.

Keywords: layer-by-layer condensation, electrical conduction, temperature coefficient of resistance, magnetoresistive properties.

(Отримано 15 травня 2020 р.)

1. ВСТУП

На сьогоднішній день проблема вивчення різних нанорозмірних гетероструктур є однією з найбільш цікавих і важливих як для фундаментальної науки, так і для прикладних розробок [1, 2]. Гетеросистеми, до яких можна віднести ґранульовані плівкові стопи на основі феромагнетних і шляхетних металів [3, 4], композитні матеріали типу феромагнетик–діелектрик [5], масиви магнетних наночастинок [6], вакуумні тунельні структури [7] тощо, уможливають вивчати ефекти, пов'язані з перенесенням заряду та спінової поляризації [8, 9] через різні матеріали. Одержані результати можуть бути використані для створення функціональних матеріалів із новими властивостями [10].

Системи на основі шаруватих наноструктур уможливають досліджувати такі фундаментальні проблеми, як природа обмінної взаємодії між магнетними шарами через немагнетні прошарки спін-залежного розсіяння та тунелювання електронів, формування обмінної анізотропії тощо [11, 12]. Дані структури знайшли використання широкого спектра в сучасній електронній промисловості завдяки таким властивостям, як можливість запису та зчитування інформації, детектування магнетних полів тощо.

Отже, метою даної роботи було експериментальне дослідження електропровідності та магнеторезистивних властивостей свіжосконденсованих і термостабілізованих за різних температур шаруватих структур $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\text{П}$.

2. МЕТОДИКА ТА ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Для формування шаруватих структур на основі феромагнетних і діелектричних матеріалів, як правило, використовуються різні методи, що уможливають реалізувати пошарове осадження на підкладинку металевої та діелектричної компонент (магнетронне, йонно-променево, резистивне тощо; див., наприклад, [13]).

У даній роботі для формування шаруватих структур на основі Fe та SiO було використано методу пошарової електронно-променевої конденсації у вакуумі установки ВУП-5М (тиск газів залишкової атмосфери — $\sim 10^{-4}$ Па) на ситалові підкладинки за кімнатної температури. Товщина магнетних шарів d_{Fe} змінювалася у межах від 5 до 10 нм, а товщина діелектричних прошарків становила $d_{\text{SiO}} = 2$ нм. Контроль товщини шарів здійснювався *in situ* методом кварцового резонатора з точністю у 10%. Вибір товщин шарів був зумовлений тим, що при формуванні зразків ставилася задача одержати композитні матеріали типу феромагнетик–діелектрик $[\text{Fe}/\text{SiO}]_n$, де n — кількість повторів бішару (у даній роботі $n = 5$) з ультратонкими шарами [13]. Зразок у дано-

му випадку складається із наногранул Fe, між якими формуються канали з SiO (див. рис. 1). Причина сегрегації SiO на поверхні гранул феромагнетного матеріялу, згідно з [14], полягає у зменшенні енергії системи внаслідок того, що поверхнева енергія діелектричного матеріялу менша, ніж у феромагнетного.

Композиційну й елементну аналізи тонкоплівкових зразків здійснювали за допомогою сканувального електронного мікроскопа (Tescan VEGA3) з енергорозсіювальним рентгенівським (EDX) детектором (Oxford Instruments). Для даних досліджень були використані скловуглецеві підкладки розмірами 5×5 мм. Типові EDS-композиційні карти елементів Fe, Si й O та EDX-спектер для шаруватих структур $[\text{Fe}(10)/\text{SiO}(2)]_5/\text{П}$ після конденсації наведено на рис. 2. Наявність елементу С на EDX-спектрі пов'язана з вибраним типом підкладки для даних досліджень.

З EDX-композиційних карт для шаруватих структур $[\text{Fe}(10)/\text{SiO}(2)]_5/\text{П}$ було встановлено, що Fe, Si і O рівномірно розподілені по всьому об'єму плівкового зразка, що підтверджує ефективність застосування методи пошарової конденсації струк-

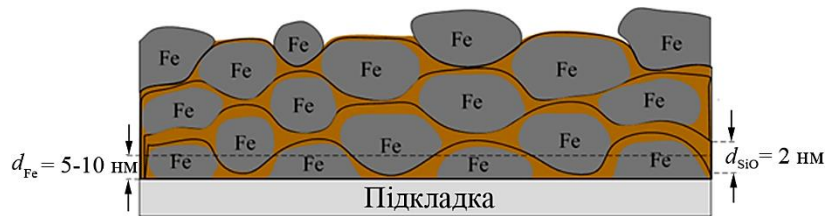


Рис. 1. Схематичне зображення структури шаруватих плівкових зразків $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\text{П}$.¹

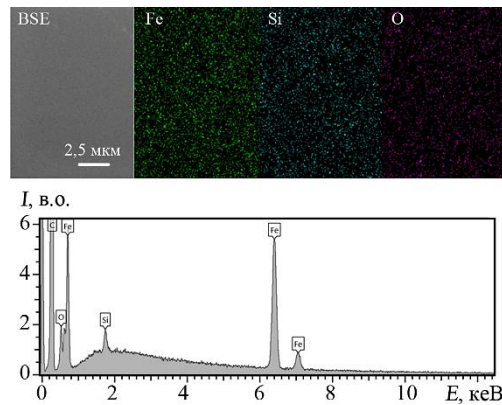


Рис. 2. EDS-композиційні карти елементів: Fe, Si й O та EDX-спектер для шаруватих структур $[\text{Fe}(10)/\text{SiO}(2)]_5/\text{П}$ після конденсації.²

тур з ультратонкими шарами для формування композитних матеріалів типу феромагнетик–діелектрик.

З метою експериментального дослідження електропровідності та впливу температурного ефекту на величину магнетоопору досліджувані зразки проходили термооброблення за схемою «нагрівання–витримка за температури у 400, 500, 600 та 700 К протягом 15 хв.–охолодження».

Дослідження магнеторезистивних властивостей проводилося у повздовжній і поперечній геометріях у зовнішньому магнетному полі індукцією $B = \pm 600$ мТл. Величина магнетоопору розраховувалася за співвідношенням $MR = (R(B) - R(B_s))/R(B_s)$, де $R(B_s)$ — електричний опір у магнетному полі насичення або у максимально можливому магнетному полі; $R(B)$ — поточне значення опору півки в магнетному полі.

3. ЕЛЕКТРОПРОВІДНІСТЬ ШАРУВАТИХ СТРУКТУР

Електрична провідність тонких металевих плівок визначається як композиційним складом, так і характером кристалічної структури. При цьому у випадку структурно несучільних або шаруватих плівок проявляються електрофізичні властивості, що значно відрізняються не лише від властивостей масивних матеріалів, але й від одношарових суцільних плівок. Зауважимо, що транспортні властивості гранульованих і шаруватих структур типу метал–діелектрик можна наближено описати за допомогою трьох режимів провідності: металічного, перехідного та діелектричного [15]. Вважається, що домінуючим механізмом провідності керметних гранульованих плівок для об'ємної частки металеві фази, меншої за поріг перколяції, є тунелювання електронів.

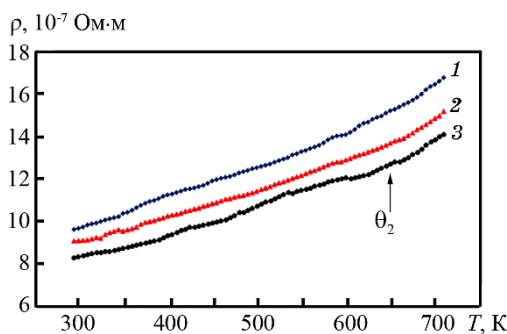


Рис. 3. Залежність питомого опору від температури для термостабілізованих за температури у 700 К структур $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\Pi$ (1 — $d_{\text{Fe}} = 5$ нм, $d_{\text{SiO}} = 2$ нм; 2 — $d_{\text{Fe}} = 8$ нм, $d_{\text{SiO}} = 2$ нм; 3 — $d_{\text{Fe}} = 10$ нм, $d_{\text{SiO}} = 2$ нм).³

У даній роботі проведено дослідження електропровідності шаруватих структур $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\Pi$ з ефективними товщинами $d_{\text{Fe}} = 5\text{--}10$ нм та $d_{\text{SiO}} = 2$ нм. На рисунку 3 наведено залежності питомого опору від температури для зразків, термостабілізованих за температури у 700 К. Як видно з рисунка, для всіх зразків реалізується металічний характер провідності в інтервалі температур 290–700 К. Це свідчить про те, що у діапазоні ефективних товщин шарів Fe $d_{\text{Fe}} = 5\text{--}10$ нм металеві шари є електрично суцільними. У той же час діелектричні прошарки можуть бути структурно несцільними внаслідок їхньої малої ефективної товщини. Таким чином, формується кластерна структура з металевих островців, які дотикаються один до одного, що й приводить до значного зростання ефективності процесів електроперенесення, а залежності $\rho(T)$ мають типовий для металів характер. На температурній залежності питомого опору спостерігаються характерні ділянки, на яких реалізується розсіяння електронів на дефектах кристалічної будови, межах зерен та інтерфейсах (електрон-магنونна взаємодія (інтервал 290 К– θ_2) та високотемпературна електрон-фононна взаємодія (інтервал θ_2 –700 К) [16].

Слід зазначити, що характерна для свіжосконденсованих зразків величина питомого опору (ρ) складає величину $(30\text{--}70)\cdot 10^{-7}$ Ом·м. У процесі термостабілізації за різних температур спостерігається зменшення питомого опору внаслідок заліковування дефектів кристалічної структури (рис. 4). Після термостабілізації за температури у 700 К питомий опір зменшується до $(8\text{--}10)\cdot 10^{-7}$ Ом·м. Для всіх досліджуваних зразків фіксувався лише додатній термічний коефіцієнт опору β .

На рисунку 5 наведено залежності питомого опору ρ від ефективної товщини шарів Fe d_{Fe} . Ці залежності носять монотонний характер, і питомий опір лише зменшується при збільшенні ефе-

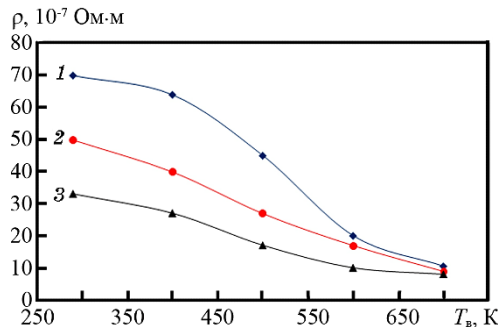


Рис. 4. Залежність питомого опору від температури відпалювання для шаруватих структур $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\Pi$ (1 — $d_{\text{Fe}} = 5$ нм, $d_{\text{SiO}} = 2$ нм; 2 — $d_{\text{Fe}} = 8$ нм, $d_{\text{SiO}} = 2$ нм; 3 — $d_{\text{Fe}} = 10$ нм, $d_{\text{SiO}} = 2$ нм).⁴

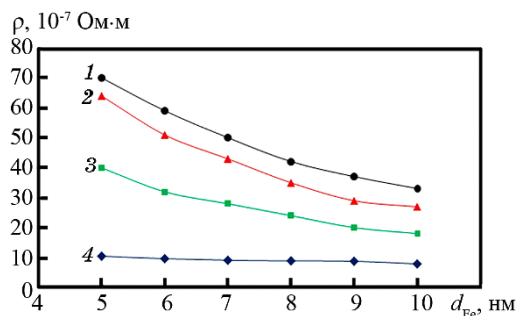


Рис. 5. Залежність питомого опору від ефективної товщини шарів Fe для свіжосконденсованої (1) та термостабілізованої за температури у 400 (2), 550 (3) і 700 К (4) шаруватої структури $[\text{Fe}(d_{\text{Fe}})/\text{SiO}(2)]_5/\text{Pt}$.⁵

ктивної товщини металічних шарів Fe. Причиною цього, на нашу думку, є прояв розмірних ефектів у плівкових матеріалах. Основними чинниками, які зумовлюють наявність розмірних залежностей ρ та β , є внесок додаткового розсіювання носіїв заряду на зовнішніх поверхнях плівки та міжзеренних межах.

4. МАГНЕТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ

Аналіза одержаних польових залежностей магнетоопору (МО) як для свіжосконденсованих зразків, так і для відпалених за різних температур показала, що МО має анізотропний характер (рис. 6). Амплітуда магнеторезистивного ефекту в поздовжній і поперечній геометріях мірювання складала близько 0,05% за кімнатної температури. Причиною цього є той факт, що феромагнетні метали у плівковому стані при формуванні їх на аморфних підкладках за кімнатної температури та достатньо великих швидкостей осадження хоча і залишаються магнетними, однак їхня намагнетованість є істотно меншою за намагнетованість масивних металевих зразків. Зменшення намагнетованості й спричиняє падіння амплітуди анізотропного магнеторезистивного ефекту.

Слід зазначити, що у подібних структурах (керметних та острівцевих плівках) механізми реалізації магнетоопору складні і на сьогоднішній день до кінця не з'ясовані [17, 18]. У нашому випадку шари Fe при $d_{\text{Fe}} = 5\text{--}10$ нм, осаджені на поверхню аморфної ситалової підкладки, як правило, є структурно несучільними. Тому можуть реалізуватися умови, за яких вплив анізотропії МО буде неістотним; домінують же ефектом буде ізотропний МО, зумовлений спин-залежним тунелюванням електронів між феромагнетними острівцями. При зазначених d_{Fe} може бути реалізована суперпозиція спин-орбітального розсіювання та спин-залежного

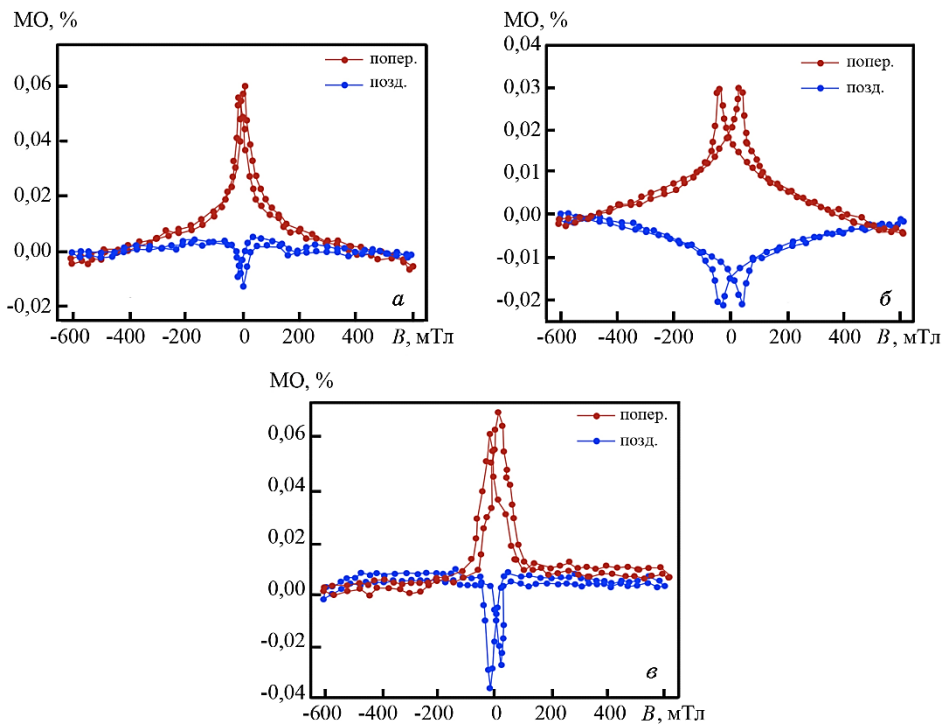


Рис. 6. Польові залежності поздовжнього та поперечного магнетоопорів свіжосконденсованих (*a*) і відпалених за температур у 500 (*б*) і 700 К (*в*) шаруватих структур [Fe(10)/SiO(2)]₅/Pi.⁶

тунелювання електронів. У нашому випадку, внаслідок достатньо малої ефективної товщини діелектричного прошарку ($d_{\text{SiO}} = 2$ нм), вже у процесі конденсації відбувається утворення кластерної структури із металічних острівців, які дотикаються один до одного. Як наслідок, домінуючим є вплив анізотропного МО. Після термооброблення за температур у 400, 500 і 700 К характер магнетоопору залишається незмінним. Слід лише зазначити, що насичення польових залежностей поздовжнього та поперечного МО структур, відпалених за температури у 500 К (рис. 6, *б*), відбувається у вищих полях, ніж для зразків, свіжосконденсованих і відпалених за температури у 700 К.

Також для таких зразків фіксується і зменшення (у 1,5–2 рази) величини МО. Такі зміни, на нашу думку, зумовлені формуванням оксидних фаз.

З підвищенням температури відпалювання до 700 К відбувається істотне збільшення розмірів зерен Fe, що і приводить до збільшення величини магнетоопору та пониження поля насичення.

5. ВИСНОВКИ

Для шаруватих структур $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5$ з товщинами шарів Fe ($d_{\text{Fe}} = 5\text{--}10$ нм) і SiO ($d_{\text{SiO}} = 2$ нм) реалізується металічний режим провідності у температурному інтервалі 290–700 К. На температурних залежностях питомого опору спостерігаються характерні ділянки, на яких реалізується електрон-магنونна (інтервал 290 К– θ_2) та високотемпературна електрон-фононна (інтервал θ_2 –700 К) взаємодії. Величина питомого опору залежить від ефективної товщини шарів Fe, що пов'язане із розмірними ефектами в плівкових матеріалах.

Магнеторезистивний ефект для свіжосконденсованих і відпалених за температур у 400, 500, 600 і 700 К шаруватих структур $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5$ має анізотропний характер. Величина як поздовжнього, так і поперечного магнетоопору в магнетних полях до 0,6 Тл не перевищує 0,1% за кімнатної температури.

Роботу виконано в рамках держбюджетних тем 0119U100777 і 0120U102005.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. C. M. Leung, J. Li, D. Viehland, and X. Zhuang, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **51**, No. 26: 3002 (2018).
2. *Nanomagnetism and Spintronics. 2nd Edition* (Ed. T. Shinjo) (Osaka–Tokyo: Elsevier B.V.: 2014); <https://doi.org/10.1016/C2013-0-00584-1>
3. I. M. Pazukha, D. O. Shuliarenko, O. V. Pylypenko, and L. V. Odnodvoretz, *J. Magn. Magn. Mater.*, **485**: 89 (2019); <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2019.04.079>
4. A. P. Singh, M. Mishra, and S. K. Dhawan, *Nanomagnetism* (Ed. Julian Maria Gonzalez Estevez) (Manchester: One Central Press: 2014), Ch. 10, p. 246.
5. D. Lisjak and A. Mertelj, *Progress in Mater. Sci.*, **38**, No. 9: 2532 (2018); <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2018.03.003>
6. Sh. Kumari, D. K. Pradhan, R. S. Katiyar, and A. Kumar, *Magnetic, Ferroelectric, and Multiferroic Metal Oxides* (Elsevier: 2018); <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-811180-2.00028-1>
7. L. Vicarelli, S. J. Heerema, C. Dekker, and H. W. Zandbergen, *ACS Nano.*, **9**, No. 4: 3428 (2015); <https://doi.org/10.1021/acs.nano.5b01762>
8. D.-K. Seo, *Handbook of Solid State Chemistry. Pt.5* (Wiley Online Library: 2017), Ch. 9; <https://doi.org/10.1002/9783527691036.hsscvol5009>
9. K.-Y. Lu, M.-W. Lu, S.-Y. Chen, X.-L. Cao, and X.-H. Huang, *J. Magn. Magn. Mater.*, **491**: 165492 (2019); <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2019.165491>
10. S. Banerjee and A. K. Tyagi, *Functional Materials* (Amsterdam: Elsevier Inc.: 2012); <https://doi.org/10.1016/C2010-0-65659-8>
11. C. Rizal, B. Moa, and B. B. Niraula, *Magnetochemistry*, **2**, No. 2: 22 (2016); <https://doi.org/10.3390/magnetochemistry2020022>

12. A. M. Chornous, Yu. O. Shkurdoda, V. B. Loboda, Y. M. Shabelnyk, and V. O. Kravchenko, *Eur. Phys. J. Plus.*, **132**: 58 (2017); <https://doi.org/10.1140/epjp/i2017-11327-x>
13. J. C. Denardin, M. Knobel, L. S. Dorneles, and L. F. Schelp, *Mater. Sci. Eng. B*, **112**: 120 (2004); doi:10.1016/j.mseb.2004.05.016
14. J. L. Maurice, J. Briatico, J. Carrey, F. Petroff, L. F. Schelp, and A. Vaures, *Philos. Mag. A*, **79**: 2921 (1999); <https://doi.org/10.1080/01418619908212033>
15. L. Zhang, C. Israel, A. Biswas, R. L. Greene, and A. de Lozanne, *Science*, **298**, No. 5594: 805 (2002); doi:10.1126/science.1077346
16. D. I. Saltykov, Yu. O. Shkurdoda, and I. Yu. Protsenko, *J. Nano-Electron. Phys.*, **10**, No. 3: 03024 (2018); [https://doi.org/10.21272/jnep.10\(3\).03024](https://doi.org/10.21272/jnep.10(3).03024)
17. A. Ya. Vovk, J. Q. Wang, J. He, W. Zhou, A. M. Pogoriliy, O. V. Shypil', A. F. Kravets, and H. R. Khan, *J. Appl. Phys.*, **91**, No. 12: 10017 (2002); <https://doi.org/10.1063/1.1480113>
18. Yu. O. Shkurdoda, I. M. Pazukha, and A. M. Chornous, *Int. J. Min. Met. Mater.*, **24**, No. 12: 1459 (2017); doi:10.1007/s12613-017-1539-6

¹Sumy State University,
2, Rimsky-Korsakov Str.,
UA-40007 Sumy, Ukraine

²Kharkiv National University of Construction and Architecture,
40, Sums'ka Str.,
UA-61002 Kharkiv, Ukraine

¹ Fig. 1. Schematic representation of the structure of layered film samples $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\text{II}$.

² Fig. 2. EDS-compositional maps of elements: Fe, Si, and EDX-spectrum for the layered structures $[\text{Fe}(10)/\text{SiO}(2)]_5/\text{II}$ after condensation.

³ Fig. 3. Temperature dependence of resistivity for the structures $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\text{II}$ thermostabilized at a temperature of 700 K (1— $d_{\text{Fe}} = 5$ nm, $d_{\text{SiO}} = 2$ nm; 2— $d_{\text{Fe}} = 8$ nm, $d_{\text{SiO}} = 2$ nm; 3— $d_{\text{Fe}} = 10$ nm, $d_{\text{SiO}} = 2$ nm).

⁴ Fig. 4. Dependence of resistivity on the annealing temperature for the layered structures $[\text{Fe}/\text{SiO}]_5/\text{II}$ (1— $d_{\text{Fe}} = 5$ nm, $d_{\text{SiO}} = 2$ nm; 2— $d_{\text{Fe}} = 8$ nm, $d_{\text{SiO}} = 2$ nm; 3— $d_{\text{Fe}} = 10$ nm, $d_{\text{SiO}} = 2$ nm).

⁵ Fig. 5. Dependence of resistivity on the effective thickness of Fe layers for the layered structure $[\text{Fe}(d_{\text{Fe}})/\text{SiO}(2)]_5/\text{II}$ freshly condensed (1) and thermostabilized at the temperatures of 400 (2), 550 (3) and 700 K (4).

⁶ Fig. 6. Field dependences of the longitudinal and transverse magnetoresistances of the layered structure $[\text{Fe}(10)/\text{SiO}(2)]_5/\text{II}$ freshly condensed (a) and annealed at the temperatures of 500 (б) and 700 K (в).