## Магніторезистивні властивості масиву наночастинок оксиду заліза у провідній матриці

Д.М. Костюк, С.І. Проценко, Л.В. Однодворець, І.В. Чешко, І.Ю. Проценко

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

(Получено 28.10.2015; опубликовано online 10.12.2015)

Представлені результати дослідження гігантського магнітоопору у плівкових системах Ag / масив НЧ феритів / Ag і графен / масив НЧ феритів / графен, які були сформовані методами спін-коатингу або методу Ленгмюра-Блоджетт. У системах першого типу при термообробці величина МО змінюється у межах 3-20 %, а у системах другого типу складає 3 %. Установлено, що оптимальна товщина плівки Аg, при якій MO = 2 %, має величину 5 нм.

Ключові слова: Наночастинки Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> та NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Провідна матриця, Графен, Магнітоопір.

PACS number: 68.55.Nq, 71.20.Be, 71.20.Eh

## 1. ВСТУП

Магнітні наночастинки (НЧ) синтезуються методами співосадження, гідротермальний синтез, мікроемульсії, золь-гель реакції, поєднанням різних матеріалів та вихідних фаз. Найбільший інтерес привертають магнітні НЧ оксидів заліза Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> та  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ферити шпінелі із базовим металом Со або Ni, а також НЧ магнітних матеріалів та їх сплавів. Останнім часом основна увага приділена розробці методів для синтезу монодисперсних магнітних НЧ із контрольованою формою, високим ступенем гідрофобності, стабільністю поверхневої структури, функціональністю.

Для синтезу НЧ  $Fe_3O_4$  методом спів осадження використовують розчин солей  $FeCl_3$  та  $FeCl_2$  у деоксидованій дистильованій воді у молярному співвідношенні 2 : 1 [1, 2]. Авторами роботи [3] для синтезу НЧ феритів шпінелі CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> та NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> були використані оксалатові прекурсори, із використанням яких отримані НЧ NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> із широким діапазоном розмірів 5-25 нм [4].

Гідротермально-хімічний метод використовувався для синтезу НЧ СоFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> з різною геометричною формою і розмірами (восьмигранні зерна 20 нм [5], октаедри 240 нм [6]). Низькотемпературний гідротермальний метод також використовувався для отримання НЧ та нанострижнів СоFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [7].

Ферити-шпінелі можуть бути синтезовані у мікроемульсіях та зворотних міцелах. Для виготовлення ферро-рідини Со із середнім розміром частинок 2-5 нм автори роботи [8] використали реакцію метиламіну із додецилсульфатом кобальту та заліза. Ультрадисперсні порошки NiFe2O4 із високою кристалічністю [9] та суперпарамагнітні нанокристали Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> із розмірами від 5 нм до 60 нм [10] отримуються з використанням золь-гель методики. Золь-гель процес полягає у гідроксилюванні і конденсації молекулярних прекурсорів у розчині, що утворюють «золь» нанометричних частинок. Подальша конденсація і неорганічна полімеризація приводить до утворення тривимірної мережі оксиду металу, що представляє собою вологий гель. Електрохімічна продуктивність покращується після термообробки при високих температурах, особливо для CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, відпаленого при 1270 К протягом 24 год [11]. Таким методом були також успішно синтезовані сферичні НЧ магнетиту Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> із однорідним розподілом за розмірами приблизно 8 нм, які є перспективними об'єктами для гіпертермії.

Мета роботи полягала у дослідженні кристалічної структури, фазового складу і магніторезистивних властивостей впорядкованих масивів НЧ, формування покриттів із нанографену (НГ) та використання цих матеріалів як чутливих елементів сенсорики.

# 2. КРИСТАЛІЧНА СТРУКТУРА ОКСИДНИХ МАГНІТНИХ НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> I CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Кристалічну структуру матеріалів типу шпінель вперше дослідили E.J.W. Verwey та E.L. Heilmann (Лабораторія Philips Electronics) у 1947 році. Таку кристалічну структуру мають і ферити шпінелі із хімічною формулою  $Me^{2+}Fe_{2}^{3+}O_{4}$ , де  $Me^{2+}$  – іон двовалентного металу, а іони заліза  $Fe^{3+}$  тривалентні. Тривалентні іони заліза в  $MeFe_{2}O_{4}$  можуть бути повністю або частково заміщені іншими тривалентними іонами, наприклад  $Al^{3+}$  або  $Cr^{3+}$  (змішані феритиалюмінати або ферити-хроміти). Елементарна комірка шпінелі представляє собою куб з подвоєним ребром: вона складається із 8 катіонів A, 16 катіонів В та 32 аніонів кисню [1]. Це розташування ілюструється на рис. 1.

Рис. 2 ілюструє зображення НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> і CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> просвічуючої електронної мікроскопії (ПЕМ) та високо-роздільної ПЕМ (ВРПЕМ). ВРПЕМ зображення для обох НЧ ілюструють атомні площини та підтверджують монокристалічну структуру НЧ. Усі дифракційні лінії відповідають структурі ГЦК інверсної ппінелі, без будь-яких інших фаз та включень.

Відомі технології синтезу дозволяють отримувати монодисперсні розчини металевих НЧ різного складу і розмірів.

## 3. ФОРМУВАННЯ НАНОПОКРИТТІВ ІЗ НЧ АБО НАНОРОЗМІРНОГО ГРАФЕНУ

## 3.1 МЕТОД СПІН-КОАТИНГУ

Важливими параметрами для характеристики наноструктур вважаються особливості пакування, відстань між НЧ, кількість моношарів, кластерний характер покриттів, температура обробки та ін.



Рис. 1 – Кристалічна решітка типу шпінелі



Рис. 2 – Типові (а) ПЕМ та (б) ВРПЕМ зображення НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> та типові (в) ПЕМ та (г) ВРПЕМ зображення НЧ CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Вставки в (а) і (с) показують дифракційні картини, що відповідають НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> та CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> відповідно. Із роботи [12]

Зразки для дослідження динаміки формування покриттів із НЧ на поверхні SiO<sub>2</sub>/Si підкладок методом спін-коатингу було підготовлено шляхом капання розчинів НЧ із концентраціями 1, 5, 10, 25, 50, 75, 100 мкл/мл на підкладки, що обертались із швидкостями 10, 25, 50, 75 об/хв. Дослідження характеру розподілу НЧ на підкладках показали можливість утворення різноманітних наноструктур від малих нанокластерів до суцільних мереж із НЧ (рис. 3).

В усіх випадках утворені кластери представляють собою моношарові 2D структури із HЧ, ланцюжки і мережі (рис. 4). Внутріппе пакування HЧ у таких структурах має характер сферичного пакування, що говорить про високу енергію звязку між окремими HЧ у кластері навіть при високих швидкостях обертання. Під час процесу спін-коатингу із збільшенням швидкості обертання відбувається дефрагментація мережевих наноструктур із НЧ і перехід до кластерів суттєво не змінюються, тоді як спостерігається збільшення відстані між кластерами. При концентраціях нижче 5 мкл/мл середня кількість НЧ в одному кластері складала 15 шт.



Рис. 3 – Графіки залежності розмірів кластерів НЧ від швидкості обертання підкладки при концентраціях розчинів НЧ, мкл/мл: 1 (■), 5 (●), 10 (▲), 25 (♥) 50 мкл/мл (●) (а) та ступеня покриття поверхні підкладки наночастинками від концентрації розчинів НЧ для швидкостей обертання 10 (■), 25 (●), 50 (▲) та 75 об./хв. (♥) (б)



**Рис.** 4 – АСМ зображення типових наноструктур із НЧ, сформованих методом спін-коатингу на поверхні підкладок Si/SiO<sub>2</sub> (500 нм): окремі 2D кластери (а), ланцюжки (б) та мережі (в)

#### 3.2 МЕТОД ЛЕНГМЮРА-БЛОДЖЕТТ

Незважаючи на можливість гнучкого управління морфологією поверхонь наноструктурованих покриттів із використанням методики спін-коатингу, найбільш якісні суцільні плівки отримують із використанням спеціального обладнання, що дозволяє контролювати процесс формування наноструктурованих покриттів із подальшим їх переносом на підкладку – за технологією Ленгмюра-Блоджетт. Важливими передумовами отримання наноструктурованих покриттів із заданною морфологією та розподілом НЧ є такі параметри як однаковість розмірів НЧ, наявність та тип поверхнево-активних речовин (ПАР), рівень кислотності та температури водної субфази, площа активної поверхні ванни.

На початковому етапі формування двовимірної плівки на поверхні водної фази утворюются острівці із НЧ з майже ідеальним характером сферичного МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ МАСИВУ...

пакування. У нашому випадку при дослідженні магнітних металевих НЧ такі острівці мали форму круга, що обумовлено, з одного боку, мінімізацією енергії, а з іншого боку - сили поверхневого натягу води не дозволяють утворитися сфері, залишаючи НЧ у горизонтальній площині водної поверхні (рис. 5). Подібний характер притаманний і нанорозмірному графену. Відмінність полягає у неправильності геометричної форми частинок НГ, що призводить до появи незаповненого простору між ними. Таким чином, острівці НГ на початковому етапі мають вигляд неправильних геометричних форм або ланцюжків. За кімнатної температури острівці здійснюють повільний хаотичний рух по поверхні, час від часу стикаючись одне з одним. Такі контакти можуть призводити до часткової коалесценції або незначного перегрупування острівців із збереженням острівцевого характеру всієї плівки.



Рис. 5 – АСМ (а) та РЕМ (б) зображення сформованих кластерів із НЧ на початковому етапі формування плівки методом Ленгмюра-Блоджетт

Як видно із рис. 6, навіть майже повністю суцільна плівка зберігає свою острівцеву природу. Більш того, у результаті хаотичного руху острівці мають нерівномірний розподіл на водній поверхні, що може призводити до появи як незаповнених ділянок, так і утворення нашарувань.

## 3.3 Формування упорядкованих масивів наночастинок у провідній матриці Ag або нанографену

Характер протікання електрофізичних процесів у сенсорах на основі нанорозмірних матеріалів сильно залежить від їх структурно-фазового стану. Це обумовлено тим, що через відносно малу площу поверхні наноматеріали набувають високої хімічної активності і як результат, їх структурно-фазовий стан після нанесення може бути відмінним від початкового у залежності від умов нанесення та подальшої обробки. Тому перед проведенням будь-яких досліджень із використанням нанорозмірних матеріалів необхідно проводити їх аналіз для чіткого уявлення структури та можливості подальшого прогнозування властивостей та ефективного використання у якості наноприладових систем.

Для оцінки структурно-фазового стану використовувався просвічуючий електронний мікроскоп (ПЕМ 125 К, фірма Selmi, Україна). Впорядковані масиви наночастинок (ВМНЧ) досліджувались як після нанесення із поверхні розділу вода / повітря методом Ленгмюр-Блоджет, так і методом капання розбавленого розчину НЧ на карбонові сіточки. Еле-

## Ж. нано- електрон. ФІЗ. 7, 04039 (2015)

ктроно-мікроскопічні дослідження показали відсутність будь-яких змін у структурі після нанесення цими двома методами, що підтверджує хімічну інертність НЧ при контакті із водною поверхнею. Це обумовлено наявністю ПАР, які окрім цього забезпечують самоупорядкування НЧ у впорядковані масиви. Ці обставини дозволяють проводити якісні дослідження моношарів таких НЧ без утворення нашарувань та агломератів.



Рис. 6 – АСМ (а, в) та РЕМ (б, г) зображення сформованих методом Ленгмюра-Блоджетт моношарів металевих НЧ CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (а, в) та плівок НГ (б, г)

Для мінімізації протікання процесів дифузії між НЧ та провідною матрицею, перед нанесенням провідної матриці проводилась температурна обробка масивів НЧ. У випадку двокомпонентних оксидних НЧ NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> відпал при температурі 1100 К призводить до утворення декількох фаз (Fe, Ni, FeNi<sub>3</sub>), тоді як НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> переходять в НЧ Fe. Установлено, що після високотемпературного відпалювання при 1100 К спостерігається утворення слідів оксидів у-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, що свідчить про утворення тонкої оксидної оболонки на поверхні однофазних частинок. Безпосередньо термообробка призводить до укрупнення НЧ, що передбачає збільшення кількості магнітного матеріалу в окремій частинці і, як наслідок, збільшення їх магнітного моменту. Із гістограм (рис. 7) витікає, що НЧ збільшуються у розмірах майже у 3-4 рази (від 10 нм до 40 нм). Мікрознімки та відповідні електронограми від упорядкованих масивів НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> показані на рис. 8.

Як уже було відмічено, провідна матриця із немагнітного матеріалу наносилась методом термічного випарування у вакуумі як до, так і після проведення температурної обробки ВМНЧ. Такий підхід дозволив прослідкувати вплив розміру НЧ на їх електрофізичні та магніторезистивні властивості у провідній немагнітній матриці Ag із мінімальним впливом процесів дифузії між НЧ та ПМ. У випадку тон кого шару ПМ Ag утворюються переважно напівсферичні кластери із середнім радіусом 30 нм та 50 нм для ПМ товщиною 5 нм та 10 нм, відповідно. Висота



**Рис. 7** – Гістограми розподілу НЧ  $Fe_3O_4$  (а, б), Ni $Fe_2O_4$  (в, г) і  $CoFe_2O_4$  (д, е) за розмірами до (а, в, д) та після відпалу при температурі 1100 К (б, г, е)



**Рис. 8** – Мікрознімки (а-г) та відповідні електронограми (а'-г') від упорядкованих масивів НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (а, б) та NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (в, г) без (а, в) та після відпалювання при 1100 К (б, г)

кластерів зростає із збільшенням товщини ПМ і складає 20 нм, 30 нм, 60 нм та 80 нм для товщин 5 нм, 10 нм, 15 нм та 20 нм відповідно.

На рис. 9а, б наведені ПЕМ мікрознімки провідної матриці (ПМ) Ад товщиною 10 нм, нанесеної на ВМНЧ без та після попередньої обробки при 1100 К. Утворені кластери після відпалу ПМ при 300 °С показано на рис. 9 (а', б'). Із рисунку видно, що ВМНЧ зберігають своє упорядкування, що говорить про незмочуваність цих матеріалів.

Схематичне зображення процесу формування функціональних покриттів наведено на рис. 10. Показано, що на першому етапі формується рівномірне



**Рис. 9** – Мікрознімки сформованої на впорядкованому невідпаленому (a, a') та відпаленому при 1100 К (б, б') масиві HU NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> провідної матриці Ад товщиною 10 нм до (a, б) та після термообробки при 600 К (a', б')



Рис. 10 – Схематичне зображення процесу формування мережевої структури після відпалу провідної матриці при 600 К (а) масив ВМНЧ, (б) відпал ВМНЧ при 1100 К, (в) нанесення провідної немагнітної матриці, (г) відпал сформованої структури при 600 К

МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ МАСИВУ...

покриття поверхні магнітними НЧ; на другому етапі сформоване покриття із НЧ відпалюється до високих температур, що призводить до укрупнення НЧ та збільшення їх магнітного моменту; після цього, на третьому етапі, ПМ немагнітного матеріалу наноситься на такий масив збільшених магнітних НЧ; останній, четвертий етап, необхідний для підвищення ефективності наноприладових елементів шляхом утворення самоорганізованого функціонального покриття, коли відбувається формування масивів (мереж) спін-вентильних переходів, що у в декілька разів покращує магніторезистивні властивості у порівнянні із структурами без використання відпалу ПМ. Сформовані у результаті такого процесу функціональні металеві наномережі можуть утворювати не тільки нанорозмірні спін-вентилі, а і багатошарові спін-вентильні нанодроти, що лежать у площині підкладки. Разом із цим, явним недоліком таких систем є складність контролю їх утворення із використанням методики звичайного відпалювання.

## 4. МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ НА-НОСТРУКТУРОВАНИХ СИСТЕМ НА ОСНОВІ НЧ ФЕРИТУ У ПРОВІДНІЙ МАТРИЦІ СРІБЛА

У даному розділі представлені результати досліджень магніторезистивних властивостей нанотруктурованих систем в провідній матриці срібла, що є продовженням започаткованих у роботі [13] досліджень на прикладі системи із НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> у плівковій провідній матриці міді та подальшим розвитком методики формування плівкових матеріалів із СЗРЕ, запропонованої в [14]. Товщина ПМ сильно впливає на величину і характер залежностей магнітоопору (МО) через те, що сформована мережева структура при великих значеннях товщини може шунтувати спін-вентильні переходи знижуючи кількість ефективних взаємодій. З іншого боку надмірно мала товщина ПМ сприяє різкій зміні характеру магніторезистивної залежності. У такому випадку збільшується різниця величини електричтоно опору при намагніченні і розмагнічуванні зразка. Ця обставина ускладнює використання таких структур як чутливих елементів датчиків, де ця різниця повинна прямувати до мінімуму. Оптимальна товщина, при якій електричний опір при намагнічуванні та розмагнічуванні суттєво не відрізняється дорівнює 15 нм. Слід зазначити, що найбільш ефективне утворення поверхневих мереж спостерігається саме при такому значенні товщини ПМ срібла, яке розташовується між острівцевими утвореннями при товщині 10 нм і формуванням мереж з надмірною кількістю матеріалу при товщині 20 нм. Це підтверджує суттєву залежність величини МО від кількості магнітних інтерфейсів. Величина МО також може істотно залежати від форми чутливого елемента [15, 16]. Нами проведені вимірювання магніторезистивних властивостей зразків розміром 10 × 10 мм, 1 × 10 мм у формі меандра. Геометрія зразків задавалася кремнієвих або каптонових масок попередньо підготовлених за допомогою високоточного ріжучого лазера, що дозволило зберегти високу повторюваність розміру і форми чутливих елементів. Вимірювання проводилися в CIP конфігурації протікання струму із зовнішнім магнітним полем прикладеним паралельно підкладці. Результати наведені на рис. 11 і 12.

Із рис. 11 і 12 видно, що безпосередньо після нанесення ПМ срібла, величина МО становила 5-6 % для



Рис. 11 – Польові залежності МО для ВМНЧ NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, відпалених при температурі 1100 К та вбудованих у провідну матрицю Ад товщиною 5 нм (а), 10 нм (б), 15 нм (в), 20 нм (г) без (**в**) та з після відпалу такої структури при 600 К (•). Для випадків в і г зміни МО зафіксовано не було



**Рис.** 12 – Польові залежності МО для ВМНЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (а) та CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (б) без (•) та після відпалювання при температурі 1100 К (•), вбудованих у провідну матрицю Ад товщиною 15 нм із подальшим відпалом такої структури при 600 К

систем з товщинами провідної матриці 5 і 10 нм. У той же час системи з товщинами 15 і 20 нм показували повну відсутність впливу магнітного поля на зразок. Така поведінка ймовірно обумовлена надмірною товщиною ПМ, що призводить до повного шунтування зразка разом із інтерфейсним спін-залежним розсіюванням (СЗРЕ) на НЧ. Суттеве зростання (майже в 2 рази) величини МО спостерігалося після відпалювання срібної ПМ до 600 К, що може свідчити про збільшення ефективної довжини протікання струму і відповідно зростання кількості розсіюючої взаємодії. Максимум на залежності (~ 23 %) був зафіксований при вимірюванні МО зразка у формі смужки 1 × 10 мм з товщиною немагнітної ПМ срібла 5 нм. Його наявність можна пояснити впливом коефіцієнта форми і товщини систем [7], що ймовірно сприяє формуванню більшої кількості ефективних спін-вентилей та зменшенню шунтуючих ділянок за рахунок зменшення розмірів зразка по ширині і товщині. Необхідно також зауважити, що у випадку із зразком у формі меандру і при прикладеному паралельно підкладці зовнішньому магнітному полі, зміни величини МО практично не спостерігалося, що є причиною його компенсації при протіканні струму у зустрічних напрямах.

## 5. МАГНІТООПІР НАНОСИСТЕМ НА ОСНОВІ НЧ ФЕРИТУ У ПРОВІДНІЙ МАТРИЦІ НАНО-ГРАФЕНУ

Для проведення досліджень магніторезистивних властивостей нами було сформовано структуру  $H\Gamma/HY/H\Gamma$  із використанням почергового осадження плівок  $H\Gamma$  та магнітних HY Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> методом Ленгмюр-Блоджетт та спін-коатингу відповідно з метою вияснення можливості застосування  $H\Gamma$  як провідної матриці для чутливих елементів спінтронних приладів.

Результати досліджень показали, що зміна величини МО для НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> вбудованих у провідну матрицю НГ після відпалювання при 1100 К має усі ознаки гігантського магнітоопору у результаті реалізації СЗРЕ на НЧ феритів, оскільки НЧ переходять у феромагнітний стан за рахунок збільшення розмірів при термообробці. Важливою умовою отримання СЗРЕ у НЧ / НГ структурах є характер розподілу НЧ у провідній матриці. Методика спін-коатингу дозволяє отримувати покриття із НЧ на поверхні плівок НГ. Проте, як показали наші дослідження, у такому випадку зміна величини МО не спостерігалась. Відсутність будь-яких змін магнітоопору притаманна також НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, відпаленим при 1100 К (рис. 13). Таку поведінку можна повязати із можливим ефектом шунтуванням шару НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> плівкою НГ, який має суттєво більші значеня провідності у порівнянні із оксидними НЧ, а також залізними частинками в оксидній оболонці, сформованих у результаті відпалу при 1100 К. Іншими словами у таких структурах електричний струм протікає лише через плівку НГ. Додавання ще одного шару НГ на поверхню структури НЧ / НГ / П суттево змінює характер магнторезистивних залежностей таким чином, що незначна зміна величини МО спостерігається навіть у структурах, в яких масиви НЧ не проходили високотемпературну термообробку. Для таких структур підвищення величини магнітоопору можливе шляхом використання мультишарових структур, де кількість  $\Phi$ M / HM інтерфейсів безумовно зростає. Можна помітити також, що характер кривої є подібним до характеру кривої зміни MO для випадку ПМ Ag, що обумовлено впливом магнітної складової на поведінку досліджуваних структур, у даному випадку феромагнітних частинок заліза в оксидній оболонці.



**Рис. 13** – Експериментальні залежності МО від індукції магнітного поля для впорядкованих масивів НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, вбудованих у провідну матрицю НГ та відпалених при 600 К (a) і 1100 К (б)

При збільшенні розмірів НЧ Fe величина коерцитивної сили зростає. Магніторезистивна крива має несиметричний характер, оскільки частинки перемагнічуються при різних значеннях та мають деяку залишкову намагніченість. Після повного перемагнічування усіх частинок опір різко знижується при 0,8 Тл, що говорить про одно направленість усіх магнітних моментів у напрямку зовнішнього магнітного поля.

## 6. ВИСНОВКИ

1. Проаналізовано вплив зміни швидкості обертання підкладки та концентрації НЧ у розчині на їх розподіл та формування кластерних або суцільних наноструктурованих покриттів; встановлено, що збільшення швидкості обертання при незмінній концентрації призводить до дефрагментації суцільної плівки та формуванню мережевих і кластерних наноструктурованих плівок, а збільшення концентрації у свою чергу призводить до зменшення величини швидкості обертання, при якій починається дефрагментація плівки.

2. Установлені оптимальні параметри синтезу моношарового графену, отримання суцільних покриттів на його основі із використанням методики Ленгмюра-Блоджетт та декорування таких покриттів впорядкованих масивів наночастинок із використанням методики спін-коатингу. МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ МАСИВУ...

3. Проаналізовано вплив товщини провідної немагнітної матриці Ag та її температурної обробки на магніторезистивні властивості наноприладових систем на основі впорядкованих масивів НЧ та встановлено, що відпалювання при 600 К призводить до збільшення величини MO від 3 до 20 %. Найбільші значення величини MO спостерігаються при товщинах провідної матриці близько 5 нм, що пояснюється збільшенням кількості інтерфейсів для спінзалежного розсіювання електронів.

4. Досліджено вплив типу НЧ вбудованих до провідної матриці Ag на лінійність зміни величини магнітоопору та встановлено, що у випадку однокомпонентних НЧ відмінність у циклах «намагнічування ↔ розмагнічування» має найменше значення, проте у цьому випадку лінійність зберігається до 0,45 Тл. У випадку двокомпонентних НЧ лінійність зберігається до величини індукції магнітного поля 0,8 Тл.

5. Уперше розглянуто можливість використання покриттів із моношарового графену як провідної немагнітної матриці та отримано, що величина МО у цьому випадку становить близько 3%.

Робота виконана у рамках Державної програми МОН України «Навчання студентів і аспірантів та стажування наукових і науково-педагогічних працівників у провідних вищих навчальних закладах та наукових установах за кордоном» згідно з договором між Сумським державним університетом і Університетом Лотарингії (м. Нансі, Франція).

## Magnetoresistive Properties of the Array of Iron Oxide Nanoparticles in Conducting Matrix

D.M. Kostyuk, S.I. Protsenko, L.V. Odnodvorets, I.V. Cheshko, I.Yu. Protsenko

#### Sumy State University, 2, R.-Korsakov Str., 40007 Sumy, Ukraine

The results of the study of giant magnetoresistance in film systems Ag / array of ferrite nanoparticles / Ag and graphene / array of ferrite nanoparticles / graphene, which were formed by means of spincoating or Langmuir-Blodgett technique, are represented. In systems of the first type during annealing the magnetoresistance value is changed within 3-20 %, and in the systems of the second type -3 %. It is established that the optimum Ag film thickness, where magnetoresistance MR = 2 %, has a value of 5 nm.

Keywords: Nanoparticles Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> and NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Conductive matrix, Graphene, Magnetoresistance.

## Магниторезистивные свойства массива наночастиц оксида железа в проводящей матрице

## Д.Н. Костюк, С.И. Проценко, Л.В. Однодворец, И.В. Чешко, И.Е. Проценко

Сумский государственный университет, ул. Римского-Корсакова, 2, 40007 Сумы, Украина

Представлены результаты исследования гигантского магнитосопротивления в пленочных системах Ag / массив НЧ ферритов / Ag и графен / массив НЧ ферритов / графен, которые были сформированы методами спин-коатингу или метода Ленгмюра-Блоджетт. В системах первого типа при термообработке величина МО меняется в пределах 3-20 %, а в системах второго типа составляет 3 %. Установлено, что оптимальная толщина пленки Ag, при которой MC = 2 %, имеет величину 5 нм.

Ключевые слова: Наночастицы Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> и NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Проводящая матрица, Графен, Магнитосопротивление.

#### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

- Y. Fuji, H. Yuasa, H. Fukuzawa, J. Magn. Magn. Mater. 322, 1449 (2010).
- J-W. Yoo, H.W. Jang, V.N. Prigodin, C. Kao, C.B. Eom, A.J. Epstein, *Synthetic Met.* 160, 216 (2010).
- A.E. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S. Zhang, F.E. Spada, *Phys. Rev. Lett.* 68, 3745 (1992).
- J.Q. Xiao, J.S. Jiang, C.L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* 68, 3749 (1992).
- D.M. Cox, D.J. Tevor, R.L. Whetten, E.A. Rohleng, A. Kaldor, *Phys. Rev. B* 32, 7290 (1985).
- W.A. de Heer, P. Milani, A. Chatelain, *Phys. Rev. Lett.* 65, 488 (1990).
- J.H. Jungand, T.W. Kim, M.S. Songand, Y.-H. Kim, K.H. Yoo, J. Appl. Phys. 101, 093708 (2007).
- 8. S. Sun, C.B. Murray, J. Appl. Phys. 85, 4325 (1999).
- 9. K.-L. Tsai, J.L. Dye, J. Am. Chem. Soc. 113, 1650 (1991).
- C.B. Murray, S. Sun, W. Gaschler, H. Doyle, T.A. Betley, C.R. Kagan, J. Res. Dev. 45, 47 (2001).

- C.B. Murray, S. Sun, H. Doyle. T.A. Betley, *MRS Bull.* 26, 985 (2001).
- M. Spasova, U. Wiedwald, M. Farle, T. Radetic, U. Dahmen, M. Hilgendorff, M. Giersig, J. Magn. Magn. Mater. 272-276, 1508 (2004).
- S.A. Nepijko, H.J. Elmers, G. Schonhense, M.H. Demydenko, S.I. Protsenko, D.M. Kostyuk, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Proc.* **112** No 2, 463 (2013).
- M.O. Шумакова, Л.В. Однодворець, І.Ю. Проценко, Матеріали Міжнародної конференції з теоретичної та експериментальної фізики «ЕВРИКА-2014», 151 (Львів: Україна: 2014) (М.О. Shumakova, L.V. Odnodvorets, I.Yu. Protsenko, Materialy Mizhnarodnoyi konferentsiyi z teoretychnoyi ta eksperymental'noyi fizyky «EVRYKA-2014», 151 (Lviv: Ukraine: 2014)).
- M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, *Phys. Rev. Lett.* 61, 2472 (1988).
- 16. I. Bakonyi, L. Peter, Prog. Mater. Sci. 55, 107 (2010).