

## Магніторезистивний ефект у гранульованих плівкових сплавах на основі Ag і Fe або Co

Л.В. Однорець, І.Ю. Проценко, О.П. Ткач, Ю.М. Шабельник, Н.І. Шумакова

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

(Одержавно 10.01.2017; у відредагованій формі – 26.04.2017, опубліковано online 28.04.2017)

У роботі наведені результати досліджень магніторезистивного ефекту в гранульованих плівкових сплавах на основі Ag і Fe або Co. Установлено, що при загальній концентрації атомів немагнітної компоненти від 15 до 68 ат. % в таких матеріалах утворюються гранули, що спричиняє спін-залежне розсіювання електронів та ефект ГМО, величина якого при  $T = 300$  К не перевищує 0,6 %. На основі аналізу залежності величини ГМО від радіуса гранул Co у твердому розчині Ag(Co) зроблено висновок, що при  $r_{\text{гр}} \cong 4\text{-}5$  нм має місце ефективне спін-залежне розсіювання електронів, що і обумовлює велике значення ГМО. При збільшенні  $r_{\text{гр}}$  зменшується концентрація гранул і, як наслідок, величина ГМО.

**Ключові слова:** Гранульовані плівкові сплави, Концентрація атомів, Спін-залежне розсіювання електронів, ГМО.

DOI: 10.21272/jnep.9(2).02021

PACS numbers: 75.70.i, 75.47.Np

### 1. ВСТУП

Тонкоплівкові матеріали у вигляді гранульованих сплавів, в яких спостерігається ефект гігантського магнітоопору (ГМО), знаходять широке застосування при виготовленні високочутливих перетворювальних елементів, на основі яких створюються накопичувачі інформації великої ємності, вимірювачі малих і великих електричних струмів, магнітометри, діагностичні пристрої, що сприяє проведенню досліджень характеристик і властивостей таких плівок.

У гранульованих плівкових матеріалах феромагнітні гранули розміром порядку нанометрів вкраплені в немагнітну матрицю. ГМО в таких сплавах на основі феромагнітних і немагнітних металів, що містять однодомні гранули у немагнітній матриці, було виявлено на початку 1990-х років [1, 2] і згодом знайшло пояснення в цілому ряді робіт в рамках механізму спін-залежного розсіювання електронів (СЗРЕ) на поверхні гранул (див., наприклад, [3-6]). У гранульованих плівках на основі Co та Cu, Ag або Au при різних концентраціях атомів немагнітної компоненти [3, 4] спостерігається ефект ГМО з амплітудою до 25 % завдяки СЗРЕ.

Технологія отримання ГМО-структур на основі гранульованих сплавів виявилася сумісною з процесами літографії і осадження контактів, що дало можливість використовувати її для виготовлення функціональних датчиків [5, 6]. Змінюючи матеріал, товщину і послідовність шарів, можна оптимізувати магнітні і електричні властивості таких наноструктур [7, 8] і розширити сфери їх практичного застосування. Ефект ГМО спостерігається і в інших системах із СЗРЕ: багатопшарових нанодротах та спін-вентильних структурах на основі металевих плівок і ансамблів наночастинок оксидів металів. У роботі [9] на прикладі плівкового гранульованого сплаву  $(\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50})_x\text{Ag}_{1-x}$  при  $0,08 < x < 0,80$  товщиною  $d = 400$  нм (електронно-променеве співосадження компонентів) було отримано при  $x = 0,13$  значення ГМО = 35 % ( $T = 10$  К) та ГМО = 17 % ( $T = 300$  К). У роботі [10] вивчалися властивості гранульованих керметних плівок  $(\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ . Було з'ясовано, що практично ізотропний тунельний МО

(ефект, який, як і ГМО, пов'язаний із спін-залежним розсіюванням носіїв електричного струму) величиною до 10 % спостерігається при кімнатній температурі при концентраціях  $0,12 < x < 0,16$ . В огляді [11] проведено аналіз і узагальнення результатів досліджень ефекту ГМО в багатопшарових матеріалах, розглянуті прикладні аспекти досліджень і перспективи розвитку ГМО-структур.

Вивчення кристалічної структури плівок на основі Ag і Co [12] товщиною 500-600 нм показало, що постійна решітки із збільшенням концентрації атомів Co зменшується практично лінійно. Величина МО, яка для цих плівок при кімнатній температурі має значення 22 %, після термообробки при  $T_b = 470$  К збільшується приблизно на 5 %, а після підвищення температури до  $T_b = 670$  К - суттєво зменшується. При  $c_{\text{Co}} = 38$  ат. % досягає максимального значення МО = 28 %.

У роботі [13], метою якої була оцінка внеску процесів розсіювання у магнітотранспортні властивості мультишарів  $[\text{Ag}(2,6\text{нм})/\text{Fe}(0,2)]_{75}/\text{Ag}(2,6)$ ;  $[\text{Ag}(1,3)/\text{Fe}(0,2)]_{75}/\text{Ag}(1,3)$  і  $[\text{Ag}(0,8)/\text{Fe}(0,2)]_{75}/\text{Ag}(0,8)$ . Було встановлено, що, не дивлячись на те, що в мультишарах одночасно співіснують великі зерна і гранули магнітних компонент, розсіювання на гранулах відіграє домінуючу роль в сильних магнітних полях в широкому діапазоні температур і визначає максимальне значення ГМО = 5 % таких структур [13].

Авторами роботи [14] проведено огляд сенсорів різного функціонального призначення (сенсори температури, деформації, тиску та магнітного поля; електронні сенсорні пристрої на основі ГМО-ефекту; магніторезистивні плівкові елементи для надщільного запису інформації) на основі плівкових матеріалів і наночастинок та описані деякі технологічні методи, які забезпечують точне визначення їх робочих параметрів і довгострокову стабільність.

### 2. МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Нами встановлені умови утворення твердих розчинів (т. р.) Ag(Co) або Ag(Fe) і виділення в них наногранул Fe або Co (рис. 1) у плівкових матеріалах,

сформованих одночасною або пошаровою конденсацією із наступною термообробкою до  $T_b \approx 900$  К.

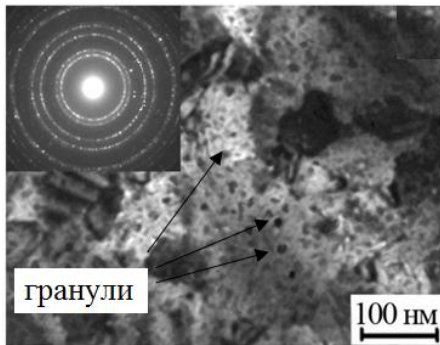


Рис. 1 – Мікроструктура та відповідна їй електронорама від гранульованого т.р. Ag(Co), сформованого на основі двошарової плівкової системи Ag(40)/Co(30)/П

Вимірювання магніторезистивних властивостей проводилося при кімнатній температурі в трьох геометріях: поздовжній – магнітне поле паралельне струму і підкладці ( $\mathbf{B} \parallel \mathbf{j}, \Pi$ ), поперечній – поле перпендикулярно струму і паралельне підкладці ( $\mathbf{j} \perp \mathbf{B} \parallel \Pi$ ) та перпендикулярній – лінії магнітної індукції перпендикулярні до струму і підкладки ( $\mathbf{B} \perp \mathbf{j}, \Pi$ ), де  $\mathbf{B}$  – індукція магнітного поля,  $\mathbf{j}$  – вектор густини електричного струму;  $\Pi$  – підкладка. Польові залежності опору були побудовані в автоматизованому режимі за чотириточковою схемою: на зовнішні контакти подавався постійний електричний струм величиною 1 мА, напруга знімалася із внутрішніх контактів вольтметром НР-34401А, величина індукції магнітного поля між котушками індуктивності контролювалася датчиком Холла магнітометру НТМ-11S і становила величину до 1,2 Тл. Плівкові зразки на столику із немагнітного матеріалу розміщувався між електромагнітами у вакуумній камері, в якій попередній вакуум створювався форнасосом Alcatel SD. Результати вимірювання досліджуваних величин передавалися по інтерфейсу GPIB-RS-232 з приладів на комп'ютер і оброблялися з використанням програмного забезпечення, що було створене в середовищі LabView. Розрахунок магнітоопору проводився за формулою:

$$MO = \Delta R / R(0) = (R(B) - R(0)) / R(0), \quad (1)$$

де  $R(B)$  і  $R(0)$  – опір зразка у зовнішньому магнітному полі та при його відсутності.

### 3. РЕЗУЛЬТАТИ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ

У роботі представлені результати досліджень магніторезистивних властивостей плівкових матеріалів на основі Ag і Fe або Co та з різною концентрацією немагнітної компоненти в одному технологічному циклі методом пошарової або одночасної конденсації з наступною термообробкою в інтервалі температур 300-900К. Для зменшення або уникнення впливу матеріалу підкладки на структуру плівкових матеріалів як підкладки використовувалися пластини Si із природним шаром оксиду. Питомий опір зразків складав величину  $(1-3) \cdot 10^{-7}$  Ом·м,

що дає підстави стверджувати про достатню чистоту отриманих зразків і про мінімальний вплив домішкових атомів на магніторезистивні властивості.

Вимірювання МО у плівках, які у вихідному стані представляли тришарову систему Fe(3)/Ag( $d$ )/Fe(3)/П, ( $d \approx 1, 3$  або 5 нм), вказує на те, що при зміні індукції магнітного поля від  $-0,45$  до  $0,45$  Тл величина МО має найбільші значення у поздовжній геометрії і дорівнює 0,30-0,45 % і 0,12-0,28 %, відповідно. Як приклад на рис. 2 наведені польові залежності МО для плівок Ag(1, 3, 5 нм)/Fe(3)/П. Відпалювання зразків до  $T_b = 800$  К призводить до незначного (на 2-8 %) зростання величини МО у трьох геометріях вимірювання.

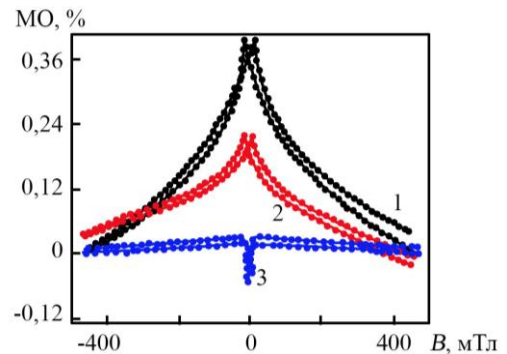
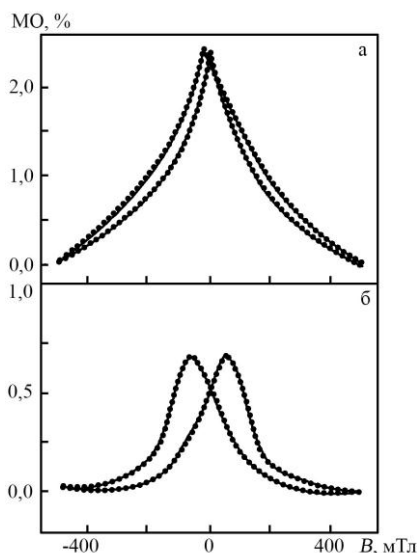


Рис. 2 – Польові залежності МО для тришарових плівкових систем у вихідному стані: 1 – Fe(3)/Ag(5)/Fe(3)/П; 2 – Fe(3)/Ag(3)/Fe(3)/П; 3 – Fe(3)/Ag(1)/Fe(3)/П при поздовжній геометрії вимірювання

Необхідно відмітити, що у невідпалених плівках на основі Ag і Fe, які були сформовані методом одночасної конденсації двох металів, спостерігається польова залежність МО з досить високими значеннями (до 2,5 %) при кімнатній температурі вимірювання (рис. 3), що дозволяє зробити висновок про гранульований стан досліджуваних зразків.

Авторами роботи [15] вказується, що плівкові системи (Ag + Fe)/П, отримані методом магнетронного розпилення (середній розмір гранул  $\alpha$ -Fe близький до 10 нм), мають найвищі значення МО у порівнянні із зразками, які сформовані іншими методами. Цей висновок до великої міри підтверджується даними роботи [16], на думку авторів якої максимальне значення МО фіксується у зразках, які мають велику кількість гранул  $\alpha$ -Fe розміром у декілька нм, локалізованих у неупорядкованому т.р. атомів Fe у матриці Ag. Зменшення величини МО після відпалювання можна пов'язати із збільшенням середнього розміру гранул  $\alpha$ -Fe, що призводить до зменшення ефективності СЗРЕ.

У тришарових плівкових системах Co (5-10 нм)/Ag(10-20 нм)/Co(5-10 нм)/П спостерігаються ознаки ГМО на польових залежностях МО у трьох геометріях (див., наприклад, [17, 18]) та максимальні величини МО = 0,5-0,8 % при поздовжній геометрії вимірювання. Установлено, що у плівкових гранульованих сплавах на основі Ag і Co величина МО = 0,4-0,5 % (при загальній концентрації  $c_{Co} = 38$  ат. %), а при збільшенні концентрації  $c_{Co}$  спочатку зростає до величин 1,5-1,8 % (при  $c_{Co} = 60$  ат. %), а потім зменшується до 0,4-0,5 % (при  $c_{Co} = 70$  ат. %).

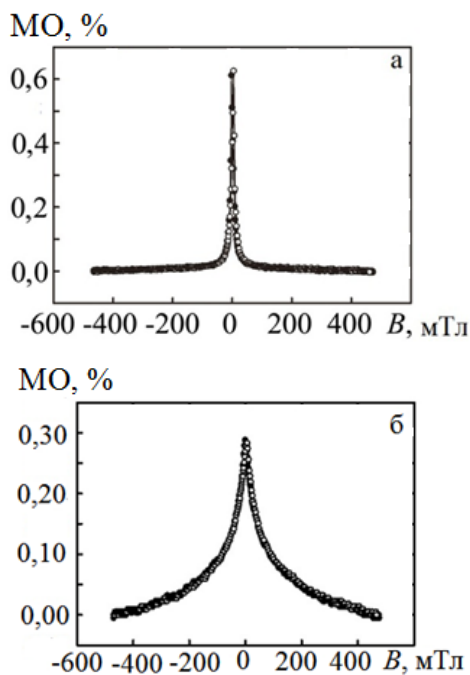


**Рис. 3** – Польова залежність МО для невідпаленої (а) і відпаленої до  $T_b = 750$  К (б) плівкової системи (Fe + Ag)/П при  $c_{Ag} = 70$  ат. % у поздовжній геометрії вимірювання МО

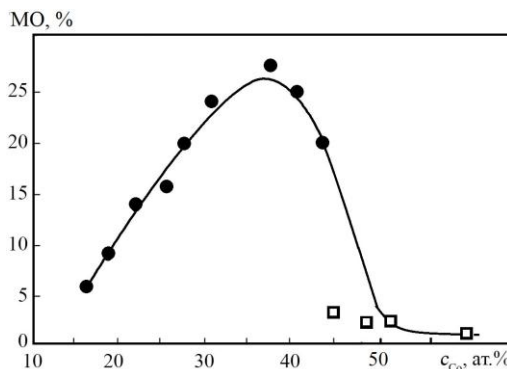
На рис. 4 представлені залежності МО від індукції магнітного поля для плівкових систем Co(8)/Ag(4)/Co(10)/П і Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П у вихідному стані.

Узагальнені на основі літературних і власних експериментальних даних концентраційні та розмірні залежності МО і ГМО наведені на рис. 5 і 6 відповідно.

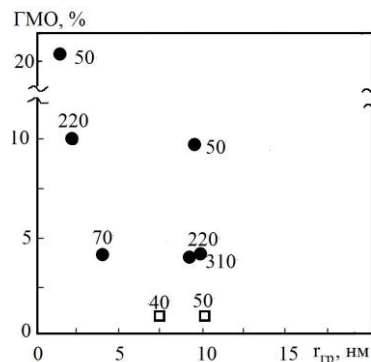
Для систем на основі Ag і Fe отримана [13] аналогічна за характером концентраційна залежність, але з меншою амплітудою ГМО (до 5 %). Різке зменшення



**Рис. 4** – Залежність МО від прикладеного магнітного поля для плівкових систем Co(8)/Ag(4)/Co(10)/П (а) та Co(5)/Ag(2)/Co(5)/П (б) у вихідному стані при поздовжній геометрії вимірювання



**Рис. 5** – Концентраційна залежність МО для плівкових сплавів на основі Co і Ag: ● – дані роботи [12]; □ – наші дані



**Рис. 6** – Розмірна залежність ГМО при  $T \approx 300$  К для плівкових сплавів на основі Co і Ag: ● – дані із роботи [18]; □ – наші дані. Біля точок вказана товщина зразків у нм

величини МО при збільшенні середнього радіуса гранул можна пояснити зменшенням їх концентрації. Це призводить до зниження ефективності СЗРЕ і, як наслідок, зменшення величини ГМО. Своєрідним оптимальним значенням радіуса гранул виступає величина  $r_{gr} \approx 4-5$  нм, а область їх суперпарамагнітності реалізується при  $r_{gr} < 2$  нм.

Таким чином, дослідження магніторезистивних властивостей плівок феромагнетик (Co, Fe)/благородний метал (Ag) вказують на те, що при загальній концентрації атомів немагнітної компоненти від 15 до 68 ат. % в таких матеріалах утворюються гранули, що спричиняє СЗРЕ та ефект ГМО, величина якого при  $T = 300$  К не перевищує 0,6 %.

Указані плівкові системи можуть бути використані як чутливі елементи сенсорів, оскільки фазовий склад гранул має широкі температурні і концентраційні інтервали стабільності.

Робота виконана в рамках держбюджетної тематики кафедри прикладної фізики Сумського державного університету № 0115U000689.

**Magneto-resistive Effect in Granular Film Alloys Based on Ag and Fe or Co**

L.V. Odnodvoretz, I.Yu. Protsenko, O.P. Tkach, Yu.M. Shabelnyk, N.I. Shumakova

*Sumy State University, 2, Rymskyi-Korsakov Str., 40007 Sumy, Ukraine*

The results of studies magneto-resistive effect in granular film alloys based on Ag and Fe or Co were presented. It is established that in the total atomic concentration of nonmagnetic components from 15 to 68 at. % in such materials form granules, causing spin-dependent scattering of electrons and the effect of GMR, whose value at  $T = 300$  K does not exceed 0.6 %. It is shown that the indicated film systems can be used as sensitive sensor elements, since the phase composition of granules is the wide temperature and concentration intervals of stability. Based on analysis of the dependence GMR versus the radius granules Co in solid solution Ag (Co) concluded that at  $r_{gr} \cong 4-5$  nm there is effective spin-dependent scattering of electrons and causes high GMR. With increasing  $r_{gr}$  decreasing the granules concentration and, consequently, the value of GMR.

**Keywords:** Granular films alloys, Atoms concentration, Spin-dependent scattering of electrons, GMR.

**Магниторезистивний ефект в гранульованих пліночних сплавах на основі Ag і Fe або Co**

Л.В. ОДНОДВОРЕЦЬ, І.Ю. ПРОЦЕНКО, О.П. ТКАЧ, Ю.М. ШАБЕЛЬНИК, Н.І. ШУМАКОВА

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

В роботі приведені результати досліджень магниторезистивного ефекта в гранульованих пліночних сплавах на основі Ag і Fe або Co. Установлено, що при загальній концентрації атомів немагнітних компонентів від 15 до 68 ат. % в таких матеріалах утворюються гранули, викликає спин-залежне розсіяння електронів і ефект ГМС, величина якого при  $T = 300$  К не перевищує 0,6 %. Показано, що зазначені пліночні системи можуть бути використані як чутливі елементи сенсорів, оскільки фазовий склад гранул має широкі температурні і концентраційні інтервали стабільності. На основі аналізу залежності величини ГМС від радіуса гранул Co в твердому розчині Ag(Co) зроблено висновок про те, що при  $r_{гр} \cong 4-5$  нм має місце ефективне спин-залежне розсіяння електронів, що і обумовлює високе значення ГМС. При збільшенні  $r_{гр}$  зменшується концентрація гранул і, як наслідок, величина ГМС.

**Ключові слова:** Гранульовані пліночні сплави, Концентрація атомів, Спин-залежне розсіяння електронів, ГМС.

**СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ**

1. R. Schad, C.D. Potter, P. Belien, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3500 (1994).
2. S.S.P. Parkin, Z.G. Li, D.J. Smith, *Appl. Phys. Lett.* **58**, 2710 (1991).
3. J. Vergara, V. Madurga, *J. Non-Crystal. Sol. B* **287**, 385 (2001).
4. S. Arana, E. Castaño, F.J. Gracia, *IEEE Sens. J. B* **4**, 221 (2004).
5. S. Arana, N. Arana, R. Gracia, E. Castaño, *Sensor. Actuat. A: Phys.* **123**, 116 (2005).
6. V. Pena, Z. Sefrioui, D. Arias, C. Leon, J. Santamaria, J.L. Martinez, S.G.E. de Velthuis, A. Hoffmann, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 057002 (2005).
7. O.V. Synashenko, O.P. Tkach, I.P. Buryk, L.V. Odnodvoretz, S.I. Protsenko, N.I. Shumakova, *Probl. At. Sci. Technol.* **6**, 169 (2009).
8. I.Y. Protsenko, P.K. Mehta, C.J. Panchal, K.V. Tyschenko, L.V. Odnodvoretz, Y.M. Shabelnyk, N.I. Shumakova, *J. Nano-Electron. Phys.* **6** No 1, 01031 (2014).
9. A.Ya. Vovk, V.O. Golub, L. Malkinsky, O.V. Shypil, *Metallofiz. Noveishie Technol.* **25** No 7, 827 (2014).
10. A.Ya. Vovk, J.-Q. Wang, A.M. Pogorilyi, *Metallofiz. Noveishie Technol.* **24** No 8, 1055 (2002).
11. I. Bakonyi, I. Peter, *Prog. Mater. Sci.* **55**, 107 (2010).
12. С.Х. Карпенков, *Електроніка: наука, технологія і бізнес* **1**, 50 (2001) (S.Kh. Karpenkov, *Elektronika: nauka, tekhnologiya i biznes* **1**, 50 (2001)).
13. M. Csontos, J. Balogh, D. Kaptas, L.F. Kiss, G. Mihaly, *Phys. Rev. B* **73**, 184412 (2012).
14. S.A. Nepijko, D. Kutnyakhov, S.I. Protsenko, L.V. Odnodvoretz, G. Schonhense, *J. Nanopart. Res.* **13**, 6263 (2011).
15. M. Tamisari, F. Spizzo, M. Sacerdoti, G. Battaglin, F. Ronconi, *J. Nanopart. Res.* **13**, 5203 (2011).
16. Y. Yamagishi, S. Honda, J. Inoue, H. Itoh, *Phys. Rev. B* **81**, 054445 (2010).
17. L.V. Odnodvoretz, I.Yu. Protsenko, Yu.M. Shabelnyk, M.O. Shumakova, O.P. Tkach, *J. Nano-Electron. Phys.* **8** No 3, 03034 (2016).
18. I.V. Cheshko, L.V. Odnodvoretz, I.Yu. Protsenko, M.O. Shumakova, O.P. Tkach, *J. Nano-Electron. Phys.* **8** No 4, 04028 (2016).