

## Магніторезистивні та магнітоопричні властивості фрагментів спін-вентильних структур на основі впорядкованих масивів наночастинок $\text{Fe}_3\text{O}_4$

М.Г. Демиденко, Д.М. Костюк, С.І. Проценко, Н.І. Шумакова

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

(Одержано 08.09.2014; опубліковано online 29.11.2014)

Проведено комплексне дослідження властивостей фрагментів спін-вентильних структур на основі впорядкованих масивів наночастинок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , впроваджених у провідну матрицю  $\text{Cu}$  або  $\text{Au}$ . Проаналізовано вплив орієнтації зовнішнього магнітного поля на величину магнітоопору і коерцитивної сили. Вивчено вплив температури відпалювання на морфологію поверхні та магнітооптичний ефект Керра досліджуваних структур.

**Ключові слова:** Наночастинки, Спін-вентиль, Магнітоопір, Ефект Керра

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

### 1. ВСТУП

На сьогодні в області спінтроники актуальним залишається питання щодо оптимального підбору матеріалів з необхідними параметрами для побудови багатошарових спін-вентильних структур та магнітних мультишарів, що останнім часом отримали широке застосування у приладовій базі мікро- та наноелектроніки. Також новою та маловивченою є проблема впровадження впорядкованих двомірних масивів наночастинок (НЧ) у структуру спін-вентильної системи замість одного із магнітних шарів. Дослідження нових особливостей систем отриманих таким чином відкриває нові можливості застосування комбінованих приладів на основі структур типу масив НЧ / багатошарові плівки.

Інтенсивне дослідження магнітних НЧ почалося з відкриттям у них особливих магнітних властивостей. Передусім цікавість до магнітних частинок викликана їх однодомністю.

На сьогоднішній день розроблена велика кількість методів отримання НЧ, які можна поділити на фізичні методи та хімічний синтез. Для їх отримання використовуються різноманітні способи конденсації матеріалу: термічна конденсація (див., наприклад, [1]), лазерне випарування [2] та плазмові методи конденсації [3]. У залежності від температури підкладки (як правило, це низька температура), на яку конденсується матеріал та швидкості випарування можна отримати НЧ різних розмірів та стехіометрії[4]. Проте існують способи термічного отримання НЧ без охолодження підкладки. У цьому випадку як підкладка використовується шар полімеру, який має низьку адгезію до сконденсованої плівки[5]. При конденсації матеріалу і подальшому відпалюванні зразка на поверхні полімерної підкладки утворюються масиви НЧ. У залежності від товщини конденсованої плівки та температури відпалювання можна отримати НЧ різних розмірів у діапазоні 1-50 нм. Іншими фізико-хімічними методами отримання НЧ є нанодиспергування та електроерозія.

До широко розповсюджених методів отримання масивів НЧ можна віднести хімічні, коли як вихідні речовини для хімічного синтезу використовуються металомісткі сполуки (ММС) та солі металів. Для синтезу використовують наступні методики: термоліз

або розклад ММС під дією ультразвуку, відновлення магнітних матеріалів, золь-гель метод, синтез магнітних на інтерфейсі розподілу газоподібної та рідкої фази і гетерометалічних НЧ [6-9].

Для вивчення фазового і елементного складу, морфології поверхні і розмірів НЧ використовують комплекс методів таких як рентгенівський мікроаналіз[10], просвічуюча електронна мікроскопія, електронна та рентгенівська дифрактометрія, скануюча тунельна та атомно-силова мікроскопія. При цьому мають місце особливості цих досліджень вказаними вище методами. Наприклад, при рентгенофазовому аналізі наноматеріалів не вдається отримати рентгенограми з набором вузьких рефлексів, що не може дозволити однозначно ідентифікувати склад наночастинок. При дослідженні методами атомно-силової мікроскопії[10, 11] або растрової електронної мікроскопії можна дослідити поверхневу морфологію і оцінити реальні розміри НЧ. При дослідженні методом просвічуючої електронної мікроскопії можна оцінити розміри металічного ядра, але неможна з точністю встановити товщину оболонки НЧ[12], якщо вивчаються НЧ вкриті шаром полімеру. Тому при дослідженні структурно-фазового стану, для отримання більш достовірних результатів, використовують декілька методів, які доповнюють один одного.

Метою проведених досліджень було отримання експериментальних даних щодо можливості використання впорядкованих масивів магнітних наночастинок, як елементів спін-вентильних структур. Основна увага приділялась морфологічним, магніторезистивним і магнітооптичним властивостям та їх залежності від умов термообробки.

### 2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

У дослідженнях використовувались зразки, що представляють собою структуру із одного або декількох шарів магнітних НЧ  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  або  $\text{FeO}$ , впроваджених у немагнітну провідну матрицю  $\text{Cu}$  або  $\text{Au}$ . Впорядковані масиви НЧ формувались методом капання [13] на підкладки  $\text{SiO}_2$  10 %-го розчину НЧ у толуолі. Така концентрація підбиралась виключно дослідним шляхом для більш рівномірного розподілу НЧ на поверхні кремнієвої підкладки. Поряд із очевидною простотою обраного методу нанесення НЧ

виникає ряд складностей: сильна залежність властивостей НЧ від їх розмірів, умов зберігання та нанесення [14], включаючи чистоту та вологість повітря, якість розчинника, ступінь гідрофільності підкладки та її чистоту. Тому при роботі із НЧ необхідно використовувати високоточні системи контролю параметрів нанесення НЧ. Це дає можливість підвищити повторюваність результатів та значно покращити якість самих зразків.

Формування провідної матриці поверх масиву НЧ відбувалось шляхом термічного випарування Cu або Au у вакуумній камері ВУП-5М при тиску залишкової атмосфери  $10^{-3}$ - $10^{-4}$  Па. Товщина осаджуваного матеріалу контролювалась за допомогою кварцового резонатора, що входить у склад автоматизованого комплексу, і складала 20 нм. Вплив температури відпалювання на структурно-фазовий стан НЧ на полімерних підкладках детально описано у роботі [13], де дослідження проводились з використанням електронного мікроскопу ПЕМ-125К. Для вимірювання зміни величини магнітоопору використовувалась автоматизована система, що дозволяє проводити дослідження при СІР (Current in plane) геометрії протікання струму у змінній конфігурації прикладеного зовнішнього магнітного поля. Вивчення морфології поверхні сформованих зразків проводилося з використанням методу АСМ (у контактному режимі). Були також проведені дослідження магнітооптичного ефекту Керра (МОКЕ).

### 3. АНАЛІЗ РЕЗУЛЬТАТІВ

Представлені на рис. 1 АСМ-зображення ілюструють морфологію поверхні на етапах формування зразка на основі впорядкованих масивів НЧ  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , впроваджених у провідну матрицю Cu та з подальшою термообробкою до 900 К. Аналіз зображень дає чітке уявлення про розподіл НЧ на поверхні кремнієвої підкладки безпосередньо після їх нанесення методом капання при кімнатній температурі (рис. 1а), після осадження провідної немагнітної матриці Cu (рис. 1б) та термообробки до 900 К (рис. 1в). У результаті відпалювання масиву НЧ не вкритого провідною матрицею до 700 К (рис. 2а) спостерігається деяке його упорядкування без значного збільшення розмірів НЧ. При подальшому відпалюванні до 900 К, середній розмір НЧ помітно збільшується від 10 нм до 20 нм за рахунок об'єднання НЧ (рис. 2б). При цьому необхідно відмітити, що при дослідженні методом АСМ в контактному режимі масивів НЧ не впроваджених в провідну матрицю, за рахунок слабкої адгезії НЧ до поверхні підкладки можуть спостерігатися не зовсім коректні результати стосовно морфології поверхні. Крім того аналізуючи дані геометричних розмірів НЧ необхідно враховувати ефект конволюції зонда при скануванні НЧ, радіус яких співвідноситься з радіусом кривизни зонда.

На рис. 3 представлені АСМ зображення попередньо відпалених до 700 К НЧ  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , впроваджених у провідну матрицю Au та після повторного відпалювання сформованої структури до 900 К. Аналіз отриманих

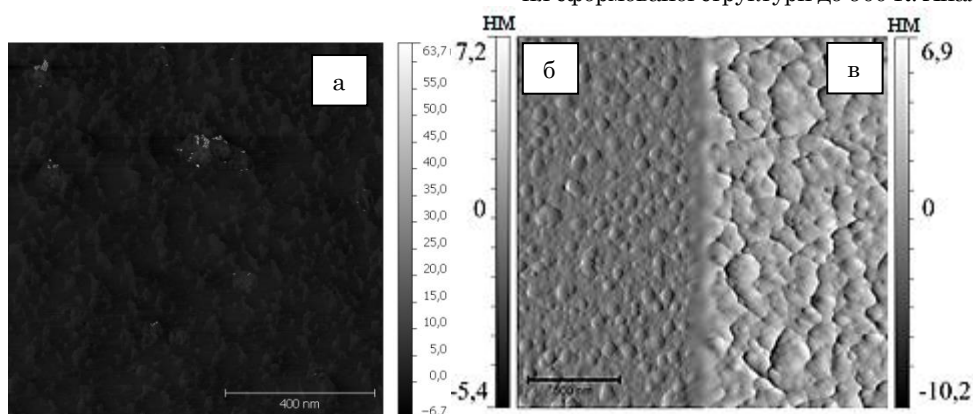


Fig. 1 – АСМ зображення НЧ  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  до відпалювання (а) без нанесення провідного шару, впроваджених у провідну матрицю Cu (б) та з подальшим відпалом до 900 К (в)

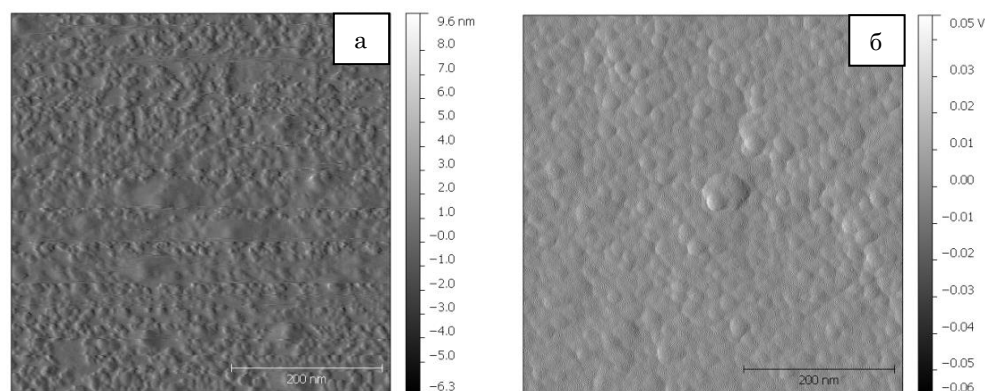


Fig. 2 – АСМ зображення НЧ  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  після відпалювання до 700 К (а) і до 900 К (б) без нанесення провідної матриці

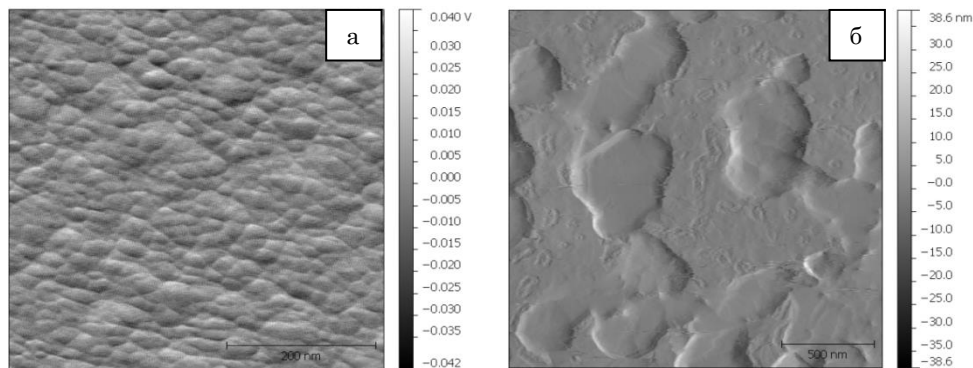


Fig. 3 – АСМ зображення попередньо відпалених до 700К НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> впроваджених у провідну матрицю Au (а) та після повторного відпалювання сформованої структури до 900 К (б)

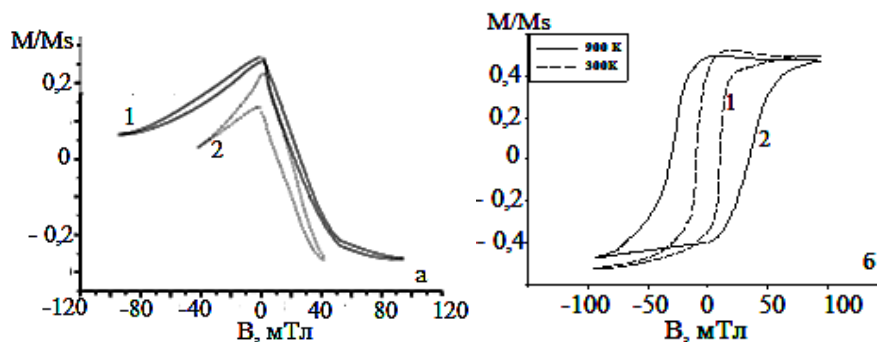


Fig. 4 – МОКЕ для відпалених до 700 К НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (а, лінія 1), подальше впроваджених у провідну матрицю Au(20) (а, лінія 2) та для системи Au(20)/Cu(20)/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(НЧ)/SiO<sub>2</sub> при кімнатній температурі та після відпалювання до 900 К (б)

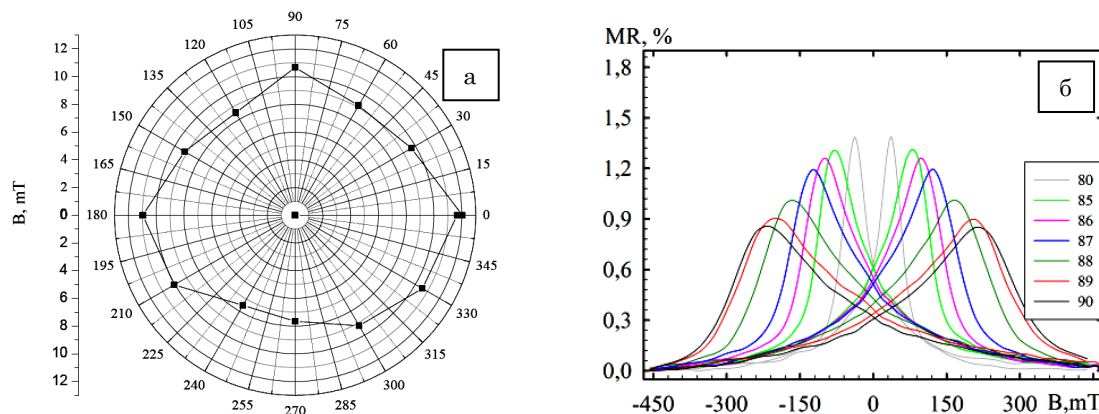


Fig. 5 – Кругова діаграма зміни величини коерцитивної сили (а) та залежність величини магнітоопору від геометрії прикладання зовнішнього магнітного поля (б)

зображень свідчить про повне розупорядкування сформованої структури із упорядкованих масивів наночастинок у провідній матриці після відпалювання до 900 К. Це можна аргументувати тим, що провідна матриця під впливом температури диспергується та утворює острівці, які включають у себе НЧ, що призводить до руйнування сформованого раніше впорядкованого масиву. Одним із наслідків цього являється різке падіння величини МО після відпалювання до цієї температури, що детально описано у роботі [13].

Залежність, яка представлена на рис. 4а описує МОКЕ для відпалених до 700 К НЧ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, що подальше впроваджувались у провідну матрицю Au. Аналіз результатів показує, що нанесення провідної матриці дещо збільшує величину коерцитивної сили. Для системи Au(20)/Cu(20)/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(НЧ)/SiO<sub>2</sub> результати дос-

лідження впливу температури на МОКЕ представлені на рис. 4б. Після термообробки цієї системи до 900 К спостерігається значне збільшення коерцитивної сили. Кругова діаграма (рис. 5а) ілюструє залежність величини коерцитивної сили від геометрії вимірювання для невідпаленого зразка.

Залежності, наведені на рис. 5б, ілюструють різке збільшення коерцитивної сили від 60 мТл до 480 мТл та зменшення величини МО від 1,3% до 0,85 % при зміні кута від 80° до 90° прикладання зовнішнього магнітного поля. Такий характер залежностей може свідчити про присутність вісі важкого намагнічення у діапазоні цих кутів. При подальшому зменшенні кута спостерігається стабілізація як коерцитивної сили (біля 60 мТл), так і МО (1,2-1,3 %), що можна пояснити наявністю осі легко намагнічення.

#### 4. ВИСНОВКИ

Методом АСМ проведений аналіз морфології поверхні структур із упорядкованих масивів наночастинок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  у провідній матриці  $\text{Cu}$  або  $\text{Au}$  на етапах їх формування і в залежності від температури відпалювання. Досліджено вплив температури на величину зміни магнітоопору та МОКЕ. Проаналізовано різке збільшення коерцитивної сили від 60 мТл до 480 мТл та зменшення МО від 1,3 % до 0,85 % у діапазоні кутів  $80^\circ$ - $90^\circ$ . Методом АСМ підтверджені результати досліджень магнітоопору, які представлені у роботі [13], а саме різке падіння величини МО після відпалювання до 900 К. Результати проведе-

них магніторезистивних досліджень корелюють з даними отриманими методом МОКЕ і з раніше проведеними дослідженнями.

На основі проаналізованих даних було зроблено висновок про можливість використання впорядкованих масивів наночастинок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , впроваджених у провідну матрицю  $\text{Cu}$  або  $\text{Au}$  як чутливих елементів сенсорів магнітного поля, датчиків повороту, елементів комутації в електроніці.

Автори виражають подяку доц.Одноворець Л.В. за обговорення результатів роботи.

Робота виконана в рамках теми №0112U001381 при фінансовій підтримці МОН України.

### Magnetoresistive and Magneto-optical Properties of Fragmented Spin-Valve Structures Based on the Ordered Arrays of $\text{Fe}_3\text{O}_4$ Nanoparticles

M.G. Demydenko, D.M. Kostyuk, S.I. Protsenko, N.I. Shumakova

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

A complex investigation of the properties of fragments of the spin-valve structures based on ordered arrays of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticles embedded in a conductive  $\text{Cu}$  or  $\text{Au}$  matrix was carried out. The effect of the orientation of an external magnetic field on the value of magnetoresistance and coercivity was established. The influence of the annealing temperature on the surface morphology and magneto-optical Kerr effect of these structures was studied.

**Keywords:** Nanoparticles, Spin-valve, Magnetoresistance, Kerr effect.

### Магниторезистивные и магнитооптические свойства фрагментов спин-вентильных структур на основе упорядоченных массивов наночастиц $\text{Fe}_3\text{O}_4$

М.Г. Демиденко, Д.М. Костюк, С.И. Проценко, Н.И. Шумакова

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

Проведено комплексное исследование свойств фрагментов спин-вентильных структур на основе упорядоченных массивов наночастиц  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , внедренных в проводящую матрицу  $\text{Cu}$  или  $\text{Au}$ . Установлено влияние ориентации внешнего магнитного поля на величину магнитосопротивления и коерцитивной силы. Изучено влияние температуры отжига на морфологию поверхности исследуемых структур и магнитооптический эффект Керра.

**Ключевые слова:** Наночастицы, Спин-вентиль, Магнитосопротивление, Эффект Керра.

#### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. M. Jergel, I. Cheshko, Y. Halahovets, P. Siffalovich, I. Mat'ko, R. Senderak, S. Protsenko, E. Majkova, S. Luby, *J. Phys. D.: Appl. Phys.* **42**, 135406 (2009).
2. D.M. Cox, D.J. Tevor, R.L. Whetten, E.A. Rohléng, A. Kaldor, *Phys. Rev.* **32**, 7290 (1985).
3. F. Fendrych, L. Kraus, O. Chayka, P. Lobotka, I. Vavra, J. Tous, V. Studnicka, Z. Frait, *Monatshfte fuer Chemie / Chemical Monthly* **133**, 773 (2002).
4. Y.Y Zheng, X.B. Wang, L. Shang, C.R. Li, C. Cui, W.J. Dong, W.H. Tang, B.Y. Chen, *Mater. Charact.* **61**, 489 (2010).
5. V.O. Zlenko, M.G. Demydenko, S.I. Protsenko, A.V. Boyun, A.A. Vozny, *J. Nano-Electron. Phys.* **4** No 4, 04023 (2012).
6. S.P. Hubin, Yu.A. Koshkarov, G.B. Khomutov, G.Yu. Yurkov, *Usp.-Khimii* **74**, 539 (2005).
7. Yongai Zhai, Fengqi Liu, Oing Zhlang, Ge Gao, *Colloid. Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects* **332**, 98 (2009).
8. S.K. Giri, N.N. Das, G.C. Pradhan, *Colloid. Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects* **389**, 43 (2011).
9. S.S. Andrade, D. Rabelo, V.K. Garg, A.C. Oliveira, P.C. Morais, *J. Magn. Magn. Mater.* **289**, 25 (2005).
10. M. Puchalski, P. Dabrowski, W. Olejniczak, P. Krukowski, P. Kowalczyk, K. Polanski, *Mater. Sci.-Poland* **25**, 473 (2007).
11. A. Rao, M. Schoenenberger, E. Gneco, Th. Glatzel, E. Meyer, D. Brandlin, L. Scandella, *J. Phys.: Conf. Series* **61**, 971 (2007).
12. J. Zheng, K. Nagashima, D. Parmiter, J. de la Cruz J, A.K. Patri, *Methods Mol. Biol.* **697**, 93 (2011).
13. S. Nepijko, D. Kutnyakhov, M. Demydenko, S. Protsenko, D. Kostyuk, G. Schonhense, *App. Phys. A* **112** No 2, 463 (2013).
14. Ching-Ling Hsu, Yi-Rong Yang, Kiwi Wood, *Chin. J. Phys.* **45**, 686 (2007).