### 08

# Статическая и динамическая проводимости аморфных наногранулированных композитов

© И.В. Антонец, Р.И. Королев, Л.Н. Котов

Сыктывкарский государственный университет им. Питирима Сорокина, Сыктывкар, Россия E-mail: aiv@mail.ru

Поступила в Редакцию 30 апреля 2024 г. В окончательной редакции 28 октября 2024 г. Принята к публикации 30 октября 2024 г.

> Представлены результаты экспериментального исследования статической и динамической проводимостей аморфных наногранулированных композитов  $(CoFeB)_x + (SiO_2)_{1-x}$ , 27.38  $\leq x \leq$  84.14 at.% толщиной 493-862 nm, напыленных на подложку из лавсана толщиной 0.02 mm. Получены спектры модуля импеданса и фазового угла в диапазоне 50 kHz-15 MHz. Приведены частотные зависимости динамической проводимости в диапазонах 50 kHz-15 MHz и 8-12 GHz, а также отношения динамической проводимости к статической от содержания ферромагнитного сплава на различных частотах. Показано, что динамическая проводимость до порога перколяции может превосходить статическую более чем на 2-4 порядка. Определено влияние структурных характеристик и состава на проводящие свойства пленок.

Ключевые слова: композитные пленки, импеданс, коэффициент отражения.

DOI: 10.61011/FTT.2024.12.59563.6373PA

#### 1. Введение

Аморфные наногранулированные композиты проявляют уникальные анизотропные, проводящие и структурные свойства [1–4], а возможность управления этими свойствами за счет развития нанотехнологий и модификации структуры имеют большие перспективы при создании новых малогабаритных СВЧ устройств в современной оптоэлектронике, сенсорике, персонализированной медицине, СВЧ системах передачи информации [5–10].

# 2. Эксперимент

Композитные пленки изготовлены методом ионнолучевого напыления в атмосфере аргона при неглубоком вакууме  $10^{-5}$  Torr в Воронежском государственном техническом университете. Элементный анализ проведен с помощью энергодисперсионной приставки сканирующего электронного микроскопа Axia ChemiSEM ThermoFisher (Чехия). Измерения статической проводимости на постоянном токе осуществляли по двухпроводной схеме, используя мультиметр цифровой НР Agilent Keysight 34401А. Пленка размерами  $7 \times 3 \text{ mm}$ приклеивалась лавсановой подложкой к текстолитовой фольгированной пластине (держатель) с диэлектрическим зазором длиной 5 mm. На ферромагнитный слой пленки наносилась токопроводящая площадка с помощью серебряной пасты, которая замыкалась с медной фольгой на текстолите. В результате образовывался участок для измерения размером 5 × 3 mm в зазоре между токопроводящей пастой. Статическая проводимость определялась по формуле

$$\sigma_0 = \frac{l}{r_0 \cdot S},\tag{1}$$

где S — сечение проводящего слоя пленки, l — длина пленки между измерительными контактами,  $r_0$  электрическое сопротивление на постоянном токе. Динамическая проводимость СЧ и ВЧ (50 kHz-15 MHz) оценивалась по измерениям модуля импеданса и фазового угла при помощи измерителя иммитанса E7-29 с подключенным к нему устройством УП-5. Измерения производились в автоматическом режиме с шагом по частоте 100 kHz и заносились в память компьютера. Динамическая СВЧ-проводимость в диапазоне частот 8 - 12 GHz рассчитывалась по измерениям коэффициента отражения в прямоугольном волноводе [11].

# 3. Результаты

были Ранее нами исследованы аморфные наногранулированные композиты состава  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x$ (SiO<sub>2</sub>)<sub>1-x</sub> [11,12]. В этих работах проводящие свойства пленок обусловлены в первую очередь содержанием в составе ферромагнитного сплава 20% полуметалла бора. В АСМ-изображениях структуры точечные наноразмерные участки проводимости были локализованы лишь на верхушках наиболее крупных частиц ферромагнитного сплава. Поэтому удельная проводимость изменялась от  $10^{-8}$  до  $10^{-4}$  S/m. В образцах, исследуемых в настоящей работе, содержание бора составляло 3-5%, что позволило значительно увеличить диапазон изменения проводимости, от  $10^{-2}$  до  $10^5$  S/m. Кроме того, исследования, представленные в [11,12], выполнены в основном при содержаниях ферромагнитного сплава еще до порога перколяции (32.79–52.00 аt.%). В настоящей работе диапазон концентраций металлической фазы исследуемых образцов позволял судить о проводящих свойствах как до порога перколяции (от 27.38 at.%), внутри области перколяции, так и значительно за пределами порога перколяции (до 84.14 at.%). Основные характеристики композитных пленок представлены в таблице.

Получены частотные спектры модуля импеданса |Z| и фазового угла  $\theta$  в диапазоне 50 kHz-15 MHz. Активная составляющая электрического сопротивления —

$$r = |Z|\cos\theta. \tag{2}$$

Используя геометрические размеры образца и расстояние между контактами, определялась динамическая проводимость:

$$\sigma = \frac{l}{|Z|\cos\theta \cdot S}.$$
(3)

В диапазоне частот 8-12 GHz динамическая проводимость  $\sigma$  по измеренному коэффициенту отражения образцов *R* оценивалась при помощи алгоритма расчета структурных и проводящих характеристик аморфных наногранулированных композитов [13], с использованием механизма замкнутой цепи модели внутригранулярных токов [13,14]:

$$\sigma = \frac{2}{Z_0 d_{\text{eff}} \left( 1/\sqrt{R} - 1 \right)},\tag{4}$$

где  $Z_0$  — импеданс свободного пространства,  $d_{\text{eff}}$  — эффективная толщина слоя композитной пленки, на который приходится основная часть ферромагнитного сплава, состоящего из проводящих гранул, то есть [14]:

$$d_{\rm eff} = d \cdot \frac{x, \text{ at.\%}}{100\%},\tag{5}$$

*х* — содержание ферромагнитного сплава в at.%.

На рис. 1 приведены экспериментально измеренные зависимости модуля импеданса (*a*) и рассчитанной динамической проводимости (*b*) в диапазоне частот 50 kHz-15 MHz.

Из рис. 1 видно, что значительные изменения модуля импеданса и динамической проводимости (до двух порядков) наблюдаются для образцов с содержанием ферромагнитного сплава до порога перколяции (27.38–35.63 at.%), что обусловлено наличием слабопроводящих островков и возникающей между этими островками емкостью. Практически линейный рост проводимости обеспечивается в первую очередь емкостными характеристиками композита. После порога перколяции для большинства пленок зависимости модуля импеданса и проводимости от частоты заметно ослабевают, а емкостной вклад уже не оказывает значительного влияния на проводящие свойства композитов.



**Рис. 1.** Зависимости модуля импеданса Z и динамической проводимости  $\sigma$  от частоты в диапазоне 50 kHz–15 MHz.



**Рис. 2.** Зависимости динамической проводимости  $\sigma$  от частоты в диапазоне 8-12 GHz.

В области СВЧ возникновение наиболее заметных экстремумов проводимости также наблюдаются для композитов с содержанием ферромагнитного сплава 27.38–35.63 at.% (рис. 2). Это может быть обусловлено интерференцией двух электромагнитных волн в противофазе, отраженных от композитной пленки и от

N₂N₂	Содержание ферромагнитного сплава x, at.%	Толщина слоя <i>d</i> , nm, толщина подложки 0.02 mm	Электрическое сопротивление $r_0,  \Omega$	Удельная проводимость $\sigma_0, S/m$
1	27.38	560	$1.00\cdot 10^8$	$2.68 \cdot 10^{-2}$
2	33.49	493	$1.76 \cdot 10^7$	$1.73\cdot 10^{-1}$
3	35.63	583	$2.35 \cdot 10^5$	$1.09\cdot 10^1$
4	46.57	697	$1.96\cdot 10^4$	$1.10\cdot 10^2$
5	56.50	774	$4.29\cdot 10^3$	$4.52\cdot 10^2$
6	58.13	635	$1.68\cdot 10^3$	$1.41 \cdot 10^3$
7	62.17	849	$5.80\cdot 10^2$	$3.04 \cdot 10^3$
8	67.21	825	$1.98\cdot 10^2$	$9.18 \cdot 10^3$
9	67.80	862	$1.68\cdot 10^2$	$1.04\cdot 10^4$
10	69.72	675	$7.96\cdot 10^1$	$2.79\cdot 10^4$
11	79.34	670	$3.01\cdot 10^1$	$7.44 \cdot 10^4$
12	84.14	565	$2.23\cdot 10^1$	$1.19\cdot 10^5$

Содержание ферромагнитного сплава, толщина слоя, электрическое сопротивление и удельная проводимость композитных пленок  $(CoFeB)_x + (SiO_2)_{1-x}$ 

лавсановой подложки при измерениях коэффициента СВЧ-отражения в волноводе. С увеличением содержания металлической фазы вклад отраженной волны от подложки нивелируется, а кривые динамической СВЧпроводимости от частоты постепенно выравниваются.

На рис. 3 приведены зависимости отношения динамической проводимости к статической для различных значений СЧ-, ВЧ- и СВЧ-диапазонов.

Как видно из рис. 3, на частотах 9 и 11 GHz динамическая СВЧ-проводимость до порога перколяции



**Рис. 3.** Зависимости отношения динамической проводимости  $\sigma$  к статической  $\sigma_0$  от содержания ферромагнитного сплава для различных частот.

более чем на 2-4 порядка превосходит статическую. Механизмами динамической проводимости в диапазоне СВЧ управляют токи внутри гранул композита [11,13], дающие основной вклад в отражение для структур с наименьшим содержанием металлической фазы. Статическая проводимость ниже порога перколяции в большей степени определяется диэлектрической фазой композитов. В области порога перколяции (46.57-56.50 at.%) токи внутри гранул, а вместе с ними и динамическая СВЧ-проводимость значительно увеличиваются. Этим можно объяснить некоторый рост  $\sigma/\sigma_0$  экспериментальных точек на рис. 3. Однако выше порога перколяции статическая проводимость определяется металлической фазой композитов, и ее резкий рост приводит к постепенному уменьшению соотношения  $\sigma/\sigma_0$ . В логарифмическом масштабе приведенные зависимости качественно описываются полиномом четвертой степени.

Не обладая вкладом в гранулярные токи за счет отражения СВЧ-волны, динамическая проводимость в диапазоне частот 1–15 МНz ниже СВЧ-проводимости, но и ее превышение над статической до порога перколяции весьма заметно (до 1–3 порядков). Согласно рис. 3, динамическая ВЧ-проводимость спадает с увеличением содержания ферромагнитного сплава по экспоненциальному закону. После порога перколяции при x > 56.50 аt.% значения динамической и статической проводимостей практически выравниваются. На частоте 50 kHz соотношение  $\sigma/\sigma_0$  до порога перколяции составляет не более 2–3.

#### 4. Заключение

В аморфных наногранулированных композитах механизмами динамической проводимости управляют токи внутри гранул структуры, которые наиболее ярко проявляют себя при содержании ферромагнитного сплава до порога перколяции и в начальной стадии процессов перколяции. Превышение динамической СВЧ-проводимости над статической может составлять более 2–4 порядков, ВЧ-проводимости — до 1–3 порядков.

#### Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке РНФ (проект № 21-72-20048).

#### Конфликт интересов

Авторы декларируют отсутствие конфликтов интересов.

# Список литературы

- A. Gerber, A. Milner, B. Groisman, M. Karpovsky, A. Gladkikh, A. Sulpice. Phys. Rev. B 55, 10, 6446 (1997).
- [2] Н.Е. Казанцева, А.Т. Пономаренко, В.Г. Шевченко, И.А. Чмутин, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников. Физика и химия обработки материалов 1, 5 (2002).
- [3] H. Gleiter. Acta Mater. 48, 1, 1 (2000).
- [4] Ю.Е. Калинин, А.Н. Ремизов, А.В. Ситников. ФТТ 46, 11, 2076 (2004). [Yu.E. Kalinin, A.N. Remizov, A.V. Sitnikov. Phys. Solid State 46, 11, 2146 (2004).]
- [5] В.В. Климов. УФН **193**, *3*, 279 (2023). [V.V. Klimov. Phys. Uspekhi **66**, *3*, 263 (2023).]
- [6] T. Jungwirth, J. Sinova, A. Manchon, X. Marti, J. Wunderlich, C. Felser. Nature Phys. 14, 3, 200 (2018).
- [7] K. Roy. IEEE Trans. Nanotechnol. 16, 2, 333 (2017).
- [8] П.Г. Баранов, А.М. Калашникова, В.И. Козуб, В.Л. Коренев, Ю.Г. Кусраев, Р.В. Писарев, В.Ф. Сапега, И.А. Акимов, М. Байер, А.В. Щербаков, Д.Р. Яковлев. УФН 189, 8, 849 (2019). [P.G. Baranov, А.М. Kalashnikova, V.I. Kozub, V.L. Korenev, Yu.G. Kusrayev, R.V. Pisarev, V.F. Sapega, I.A. Akimov, M. Bayer, A.V. Scherbakov, D.R. Yakovlev. Phys. — Uspekhi 62, 8, 795 (2019).]
- [9] A. Stupakiewicz, K. Szerenos, D. Afanasiev, A. Kirilyuk, A.V. Kimel. Nature 542, 7639, 71 (2017).
- [10] А.И. Мусорин, А.С. Шорохов, А.А. Чежегов, Т.Г. Балуян, К.Р. Сафронов, А.В. Четвертухин, А.А. Грунин, А.А. Федянин. УФН 193, 12, 1284 (2023). [А.І. Musorin, А.S. Shorokhov, А.А. Chezhegov, T.G. Baluyan, K.R. Safronov, A.V. Chetvertukhin, A.A. Grunin, A.A. Fedyanin. Phys. — Uspekhi 66, 12, 1211 (2023).]
- [11] I.V. Antonets, Ye.A. Golubev. J. Phys. Chem. Solids 184, 111674 (2024).
- [12] И.В. Антонец, Р.И. Королев, Л.Н. Котов. ФТТ 65, 12, 2055 (2023).
- [13] I.V. Antonets, Ye.A. Golubev, V.I. Shcheglov. Mater. Chem. Phys. 290, 126533 (2022).
- [14] I.V. Antonets, L.N. Kotov, Ye.A. Golubev. Mater. Chem. Phys. 240, 122097 (2020).

Редактор Е.В. Толстякова