08

Спектры импеданса и тангенса угла потерь в диапазоне частот 10 Hz-10 MHz и в интервале температур 120-420 К и магнитная структура композитных пленок (CoFeB+SiO₂)

© М.П. Ласёк¹, Л.Н. Котов¹, Ю.Е. Калинин², А.В. Ситников²

¹ Сыктывкарский государственный университет, Сыктывкар, Россия ² Воронежский государственный технический университет, Воронеж, Россия E-mail: mplasek@yandex.ru

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

> Методом импедансной спектроскопии были получены температурные и частотные зависимости вещественной и мнимой частей импеданса и тангенса угла потерь композитных пленок (CoFeB+SiO₂) на лавсановой подложке с концентрациями металлического сплава x = 0.62 - 0.92 в диапазоне частот 10 Hz - 10 MHz и в интервале температур 120 - 420 K. Получены изображения рельефа поверхности и магнитного фазового контраста пленок с помощью атомно-силового микроскопа. Показано, что вещественная часть импеданса композитных пленок с концентрациями 0.62 - 0.92 экспоненциально уменьшается с ростом частоты от 10 Hz до 10 MHz во всем исследованном интервале температур. На зависимостях тангенса угла потерь композитных пленок наблюдается максимумы, связанные с микроструктурой пленок.

> Ключевые слова: композитные металл-диэлектрические пленки, магнитная структура, импедансная спектроскопия, тангенс угла диэлектрических потерь.

DOI: 10.61011/FTT.2024.12.59577.6564PA

Композитные металл-диэлектрические пленки привлекают большое внимание научных исследователей благодаря обширному спектру их применений, таких как магнитно-резистивные сенсоры для устройств магнитной записи и чтения данных, как материалы для электромагнитного экранирования и нелинейных фильтров, микроэлектроники и спинтроники [1-8]. Такие пленки активно исследуются уже несколько десятилетий, что связано с их разнообразными магнитными, транспортными, оптическими и магнитооптическими свойствами. В качестве примеров можно привести гигантское магнитосопротивление, аномальный эффект Холла, усиленный магнитооптический эффект Керра и другие [2-6]. Одной из актуальных проблем создания новых композитных материалов с уникальными свойствами остается задача определения связи структурных статистических параметров пленок с их электродинамическими и микромагнитными свойствами. Это обстоятельство связано с их сложной и разнообразной структурой в зависимости от состава, толщины и метода изготовления пленок. Известно, что метод импедансной спектроскопии является очень информативным для исследования различных материалов [9,10]. В тоже время металл-диэлектрические композитные пленки методом импедансной спектроскопии в широком интервале температур практически не исследовались.

Композитные пленки, исследованные в настоящей работе, были получены методом ионно-лучевого рас-

пыления мишеней из металлических пластинок сплава Со₄₁Fe₃₉B₂₀ и диэлектрика SiO₂ на лавсановую пленку толщиной 30 µm в атмосфере аргона при давлении 26.7 mPa [2]. Сплав Со₄₁Fe₃₉B₂₀ известен как материал с хорошими магнитотранспортными и магнитомягкими свойствами [3,4]. Более того, сплавы CoFeB демонстрируют более высокую спиновую поляризацию, чем металлы Со, Fe и Ni (до 65% против примерно 45%) [5]. С применением электронно-сканирующего микроскопа TESCAN MIRA 3 (СЭМ) были определены доли атомов химических элементов и толщины пленок. Используя острое лезвие с торца пленки соскребались микроскопические частички пленки с подложкой на предметный столик с двухсторонним углеродным скотчем. С помощью СЭМ на основе таких приготовленных образцов были получены электронные изображения торцов пленок и далее измерены толщины пленок с точностью до единиц нанометров. Анализ элементного состава показал, что соотношение атомов Со, Fe в композитных пленках близко к соотношению тех же атомов в пластинах из сплава Co₄₁Fe₃₉B₂₀ установленных на мишенях. Соотношение атомов Si, О близко к соотношению атомов в пластинках SiO₂. Процент атомов бора В в композитных пленках, относительно количества атомов металлического сплава варьировался от 10 до 25%. Для исследуемых в данной работе пленок концентрация атомов металлического сплава х изменялась от 0.62 до 0.92, где х определяло суммарную долю атомов Со,



Рис. 1. Изображения магнитно-фазового контраста поверхности композитных пленок (CoFeB+SiO₂) с концентрациями металлического сплава x = 0.64 (*a*) и 0.90 (*b*). Справа по вертикальной шкале показаны в цвете значения сдвига фаз в градусах.

Fe, B, содержащихся в композитных пленках. Толщины пленок находились в интервале от 0.6 до 0.85 µm. Изображения рельефа поверхности и магнитного фазового контраста были получены с помощью атомно-силового микроскопа (ACM) INTEGRA Prima (NT-MDT, Pocсия). В микроскопе использовался силиконовый зонд, покрытый магнитным сплавом CoCr, толщиной 40 nm. Радиус закругления кончика зонда составлял 20 nm. Частота колебаний внешней силы, действующей на кантилевер с зондом, подбиралась в диапазоне частот 47-90 kHz. В микроскопе регистрировалось изменение фазы колебаний зонда, которое изменялась в зависимости от силы взаимодействия зонда с поверхностью пленок. Температурные и частотные исследования импеданса и тангенса угла потерь пленок проводились в Центре диагностики функциональных материалов для медицины, фармакологии и наноэлектроники Научного парка СПбГУ с применением анализатора импеданса ALPHA-AT и криосистемы Quatro в диапазоне частот от 10 Hz до 10 MHz и в интервале температур от 120 до 420 К. Композитные пленки устанавливались между электродами в форме диска диаметром 8 mm. Один электрод прижимался к поверхности композитного слоя пленки, а второй к поверхности подложки.

В результате исследований рельефа и магнитной структуры с помощью атомно-силовой микроскопии было обнаружено, что для композитных пленок с концентрациями металлического сплава 0.46-0.49 свойственна гранулярная структура с размерами гранул 20-50 nm, а для пленок с концентрациями 0.50-0.77 наблюдалась гранулярно-перколяционная структура [5,6]. Для пленок с концентрацией 0.62-0.75 характерна полосовая магнитная структура с шириной $0.2\,\mu$ m и длиной полос более $3\,\mu$ m (рис. 1, a). Структура композитных пленок с плава

x = 0.85–0.92 представляла собой металлическую матрицу с включениями диэлектрических частиц (рис. 1, *b*).

В результате проведенных исследований пленок методом импедансной спектроскопии были получены температурные и частотные зависимости вещественной и мнимой частей импеданса, а также тангенса угла потерь в диапазоне частот 10 Гц-10 МГц и в интервале температур 120–420 К композитных пленок (CoFeB+SiO₂) с концентрациями x = 0.62 - 0.92 (рис. 2, 3). Во всем исследуемом диапазоне частот вещественная часть импеданса композитных пленок с x = 0.62 - 0.92 убывала с ростом частоты в широком интервале температур 120-420 К (рис. 2). В диапазоне частот 10 Hz-1 kHz наблюдались минимумы вещественной части импеданса при температурах 120 и 300 К для пленок с x от 0.62 до 0.92, соответственно. Различие в положениях температурных минимумов вещественной части импеданса для этих пленок, по-видимому, связан с их разной микроструктурой (рис. 1). Частотная зависимость вещественной части импеданса может быть связана с неоднородным распределением емкостей и сопротивлений по объему пленки на лавсановой подложке, расположенной между электродами [10]. В этом случае в эквивалентной электрической схеме пленки между электродами можно использовать частотно-зависимый элемент, который можно сопоставить с частотно-зависимой емкостью, которая формируется за счет накопления и релаксации зарядов за полупериод электрического поля на границах проводящих конгломератов, разделенных диэлектриком. Такое скопление зарядов будет экранировать внешнее электрическое поле, что будет проявляться в эксперименте как кажущееся низкочастотное возрастание емкости и диэлектрической проницаемости по механизму Максвелла-Вагнера [9]. Абсолютное значение мнимой части импеданса в диапазоне частот от 10 Hz



Рис. 2. Температурные и частотные зависимости вещественной части импеданса композитных пленок (CoFeB+SiO₂) с концентрациями x = 0.62 (*a*) и 0.88 (*b*).



Рис. 3. Зависимость тангенса угла потерь композитных пленок (CoFeB+SiO₂) от температуры и частоты при концентрациях металлического сплава x = 0.62 (*a*) и 0.88 (*b*).

до 1 kHz монотонно возрастает с ростом температуры и экспоненциально убывает с увеличением частоты для композитных пленок с x = 0.62 - 0.92.

Для пленок с концентрациями металлического сплава от 0.62 до 0.72 в диапазоне частот от 10 kHz и выше, для которых наблюдалась полосовая магнитная структура, на частотных зависимостях тангенса угла потерь наблюдался широкий максимум во всем исследуемом интервале температур 120–420 К (рис. 3, a). Этот температурный максимум тангенса угла потерь сдвигался по частоте от 70 kHz в сторону высоких частот при росте температуры от 120 до 420 К и концентрации x. На температурных зависимостях тангенса угла потерь при концентрациях x от 0.62 до 0.92 на частоте тока до 10 kHz при температурах 250 и 370 K наблюдались дополнительные максимумы тангенса угла потерь (рис. 3, *b*). С ростом частоты эти максимумы сдвигались в сторону высоких температур и сливались в один пик в мегагерцовом диапазоне частот.

Таким образом в данной работе методом импедансной спектроскопии были получены температурные и частотные зависимости тангенса угла потерь, вещественной и мнимой частей импеданса композитных пленок (CoFeB+SiO₂) на лавсановой подложке с концентрациями металлического сплава 0.62–0.92 в диапазоне частот 10 Hz–10 MHz и в интервале температур 120-420 К. Анализ изображений МФК показывает, что для композитных металл-диэлектрических пленок с малыми концентрациями x < 0.62 характерна гранулярноперколяционная структура, а для x = 0.62 - 0.75 полосовая магнитная структура, а для пленок с большими *x* > 0.85 наблюдается металлическая матрица с диэлектрическими включениями. Анализ температурных и частотных зависимостей вещественной части импеданса и тангенса угла потерь показывает, что поведение этих зависимостей сильно отличаются для композитных пленок с разной микроструктурой. Результаты исследований композитных пленок в этой работе показывают, что метод импедансной спектроскопии является достаточно информативным для исследования электрических свойств и выявления связи этих свойств со структурой композитных металл-диэлектрических пленок на полимерной подложке, но расширения диапазона частот до СВЧ, позволило бы улучшить качество исследований.

Финансирование работы

Исследования выполнены за счет гранта Российского научного фонда, проект № 21-72-20048

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- S. Yang, J. Zhang, Chemosensors 9, 8, 211 (2021). DOI: 10.3390/chemosensors9080211
- [2] V.V. Rylkov, A.V. Emelyanov, S.N. Nikolaev, K.E. Nikiruy, A.V. Sitnikov, E.A. Fadeev, V.A. Demin, A.B. Granovsky. J. Exp. Theor. Phys. 131, 160–176 (2020). DOI: 10.1134/S1063776120070109
- [3] G.V. Swamy, P.K. Rout, H. Pandey, B. Riscob, G.A. Basheed. Nano Express 4 045002 (2023).
 DOI: 10.1088/2632-959X/acfd46
- Y. Takamura, H. Nitta, K. Kawahara, T. Kaneko, R. Ishido, T. Miyazaki, N. Hosoda, K. Fujisaki, S. Nakagawa. IEEE Trans. Magn. 59, 11, 1–4 (2023).
 DOI: 10.1109/TMAG.2023.3291879
- [5] A.S. Silva, S.P. Sá, S.A. Bunyaev, C. Garcia, I.J. Sola, G.N. Kakazei, H. Crespo, D. Navas. Sci. Rep. 11, 43 (2021). DOI: 10.1038/s41598-020-79632-0
- [6] Л.Н. Котов, В.А. Устюгов, В.С. Власов, А.А. Уткин, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников. Изв. РАН. Сер. физ. 87, 3, 441–445 (2023). DOI: 10.31857/S0367676522700776
- [7] L.N. Kotov, M.P. Lasek. J. Phys.: Conf. Ser. 2315, 012021 (2022). DOI: 10.1088/1742-6596/2315/1/012021
- [8] C. Mingming, D. Guifu, C. Ping, Z. Congchun, Z. Xiaomin, L. Zhe. Micromachines 8, 5, 151 (2017).
 DOI: 10.3390/mi8050151
- [9] И.А. Маркевич, Н.А. Дрокин, Г.Е. Селютин. ЖТФ 89, 9 1400-1407 (2019). DOI: 10.21883/JTF.2019.09.48066.42-19
- [10] E. Barsoukov, J.R. Macdonald. Impedance Spectroscopy: Theory, Experiment, and Applications. John Wiley & Sons, NJ (2018). P. 528.

Редактор Ю.Э. Китаев