## ОБНАРУЖЕНИЕ ПЕРЕХОДА МЕТАЛЛ–ДИЭЛЕКТРИК В РАЗУПОРЯДОЧЕННЫХ СИСТЕМАХ МАГНИТНЫХ НАНООСТРОВОВ

## А. П. Болтаев, Ф. А. Пудонин, И. А. Шерстнев<sup>\*</sup>, Д. А. Егоров

Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук 119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 февраля 2017 г.

Проведены исследования проводимости и диэлектрической проницаемости серий наноостровковых пленок FeNi с эффективными толщинами до 3.2 нм на различных подложках. Обнаружено, что при эффективной толщине  $d^* \approx 1.5$ –1.8 нм величина  $\operatorname{Re} \varepsilon$  изменяет знак, что связано с переходом металл–диэлектрик. Исследования температурных зависимостей проводимости подтвердили наличие перехода металл–диэлектрик при той же толщине  $d^*$ . Сделан вывод о том, что введенная эффективная диэлектрическая проницаемость может служить характеристикой островковых металлических систем.

## **DOI:** 10.7868/S0044451017090115

Металлические и магнитные наночастицы являются объектами интенсивных исследований на протяжении последних нескольких десятков лет [1]. Это связано как с огромным прикладным потенциалом этих объектов, так и с фундаментальными проблемами магнитных и электрических явлений в наночастицах, обусловленными их размером [2-4]. Так, было обнаружено значительное изменение магнитных параметров тонких пленок FeNi в диапазоне толщин 5 нм < d < 12 нм. В тонких металлических слоях Nb, Ni, Cu и др. в зависимости от их толщины наблюдались осцилляции диэлектрической проницаемости, проводимости, плазменной частоты и других параметров слоев, связанные с квантоворазмерными эффектами [5–7]. Также в разупорядоченных системах из магнитных наноостровков обнаружены фотопроводимость [8], нелинейная зависимость проводимости от электрического поля [9], гигантская низкочастотная диэлектрическая проницаемость [10]. Недавно нами были предложены «островковые магнитные сверхрешетки» [11, 12], которые обладают рядом необычных магнитных и магнитооптических свойств и способны реагировать на сверхслабые магнитные поля величиной до 10<sup>-7</sup> Э при комнатной температуре. Также для однослойных островковых пленок пермаллоя вблизи перколяционного порога был обнаружен диамагнитный отклик на внешнее магнитное поле [13, 14].

механизмы, ответственные Физические за необычные свойства островковых слоев и «островковых сверхрешеток», еще до конца не выяснены. Но, несомненно, большинство особенностей таких структур обусловлено магнитной, энергетической и геометрической структурами островковых систем. В данной работе приведены результаты исследований проводимости и диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(\omega)$  тонких островковых слоев FeNi, которые свидетельствуют о существовании порога по толщине пленки, за которым происходят кардинальные изменения физических свойств островковых систем.

Для изучения диэлектрической проницаемости и проводимости были выращены несколько серий структур из FeNi с помощью метода RF-распыления. Более подробно особенности процесса изготовления слоев FeNi приведены в работах [15, 16]. В качестве подложек использовались стандартные полированные пластины керамики (ситалл), кристаллический кремний, нитрид кремния, стекло, а также тонкие слои  $Al_2O_3$  (толщиной 7, 14, 28, 56 нм), осажденные на кремний. На поверхность выращенных слоев FeNi наносился тонкий (толщиной около 2 нм) защитный слой  $Al_2O_3$ . Каждая из серий выращивалась в одном технологическом процессе. Образцы в серии отличались друг от друга эффективной толщиной, которая определялась по времени

<sup>\*</sup> E-mail: igor.sherstnev@gmail.com



Рис. 1. Островковая пленка. Изображение, полученное при помощи растрового электронного микроскопа

напыления пленки при известной скорости осаждения FeNi. Две серии образцов на ситалловой подложке представляли собой пленки с эффективной толщиной от 7 до 24.5 Å с шагом 0.7 Å и от 15.6 до 31.2 Å с шагом 0.78 Å. Остальные пленки имели эффективные толщины 10, 12, 16, 18, 20, 24 Å. По данным атомно-силовой микроскопии выращенные пленки представляли собой разупорядоченные системы из наноостровков с латеральными размерами 5–30 нм [15]. Типичный вид однослойной островковой пленки, полученный при помощи растрового электронного микроскопа, представлен на рис. 1.

Диэлектрическая проницаемость выращенных структур изучалась с помощью автоматического спектрального эллипсометра «Эллипс-1891 САГ» в диапазоне длин волн 400-1100 нм. Поскольку эффективные толщины выращенных слоев FeNi известны, можно найти диэлектрическую проницаемость пленок, используя измеренные эллипсометрические параметры [17, 18]. Необходимо отметить, что здесь не рассматриваются вопросы, связанные с введением понятия диэлектрической проницаемости для разупорядоченной системы из наноостровов. Считается, что на подложке имеется пленка с эффективной диэлектрической проницаемостью, и эта эффективная диэлектрическая проницаемость ответственна за отклик островковой системы на внешнее электромагнитное возмущение (свет). Далее будут сделаны некоторые предположения о правомерности использования диэлектрической проницаемости в случае островковых систем. Вычисления диэлектрической проницаемости образцов проводились по стандартной формуле эллипсометрии

$$\frac{r_p}{r_s} = \mathrm{tg}\,\Psi e^{i\Delta}$$

где  $r_p$  и  $r_s$  — амплитуды коэффициентов отражения соответственно для p- и s-поляризованного света, зависящие от диэлектрической проницаемости среды,  $\Psi$  и  $\Delta$  — эллипсометрические углы, определяемые в эксперименте. Для расчета диэлектрической проницаемости использовалась двуслойная модель «пленка – защитный диэлектрический слой» (FeNi–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Более подробно расчет описан в литературе [17, 18]. Зависимости действительной части диэлектрической проницаемости от толщины пленок, полученные из эллипсометрических данных, приведены на рис. 2.

Зависимость  $\operatorname{Re} \varepsilon$  от эффективной толщины d(рис. 2) интересна тем, что при толщине  $d^* \approx \approx 1.5$ –1.8 нм величина  $\operatorname{Re} \varepsilon$  для всех серий изменяет знак. Это может свидетельствовать о том, что отклик островковой системы на оптическое возбуждение больше соответствует диэлектрику при  $d < d^*$  (когда  $\operatorname{Re} \varepsilon > 0$ ) и металлу в случае  $d > d^*$  (когда  $\operatorname{Re} \varepsilon < 0$ ). Можно считать, что при  $d = d^* \approx 1.5$ –1.8 нм на оптических частотах происходит переход металл–диэлектрик. Результат для образцов на подложке  $\operatorname{Si}_3\operatorname{N}_4$  не представлен ввиду большой погрешности при расчете, что приводит к сомнительной достоверности полученных результатов.

Отметим, что спектральные зависимости  $\operatorname{Re}\varepsilon$ для образцов с эффективной толщиной меньшей (0.84 нм), большей (2.34 нм и 2.96 нм) и равной (1.79 нм) пороговой, существенно различаются (рис. 3). Как можно заметить (рис. 3), спектральная зависимость  $\operatorname{Re} \varepsilon$  для островковых систем с пороговой эффективной толщиной  $d^*$  практически отсутствует. В то же время в случае d = 0.84 нм (т.е.  $d < d^*$ ) величина  $\operatorname{Re} \varepsilon$  растет с увеличением длины волны возбуждающего излучения и остается положительной (диэлектрический характер отклика островковой системы). В случае d = 2.34, 2.96 нм величина  $\operatorname{Re}\varepsilon$  растет по модулю и остается отрицательной (металлический характер отклика). Поэтому можно предположить, что и в случае  $\lambda \to \infty$  (или  $\omega \to 0$ ) такой переход диэлектрик-металл также будет иметь место при том же значении  $d^*$ . Однако такое предположение будет верно, если введенная нами эффективная диэлектрическая проницаемость действительно правильно характеризует диэлектрические свойства эффективного слоя.



Рис. 2. Зависимости действительной части диэлектрической проницаемости от толщины образцов на различных подложках для длины волны 1100 нм

Для подтверждения предположения о существовании перехода в случае  $\lambda \to \infty$  были исследованы зависимости проводимости на постоянном токе (dc-проводимость) от толщины. Как и во всех перколяционных системах, в островковых структурах существует перколяционный порог, при котором диэлектрический характер проводимости сменяется на металлический [19, 20]. Нам было важно не только обнаружить этот переход, но и показать, что толщина, при которой происходит изменение характер а проводимости, совпадает с пороговой толщиной  $d^*$  для диэлектрической проницаемости. Характер проводимости образцов можно определить, изучая проводимость  $\sigma$  при различных температурах.

Фактически в данном случае достаточно сравнить проводимость островковых систем при комнатной температуре,  $\sigma_{T=300 \text{ K}}$ , и при температуре жидкого азота,  $\sigma_{T=77 \text{ K}}$ : если  $\sigma_{T=300 \text{ K}} > \sigma_{T=77 \text{ K}}$ , то dc-проводимость носит диэлектрический характер в данном температурном диапазоне, если наоборот — то металлический. Зависимость проводимости  $\delta$  от температуры для всех образцов определялось как

$$\delta = \frac{\sigma_{T=300 \text{ K}} - \sigma_{T=77 \text{ K}}}{\sigma_{T=300 \text{ K}}} \cdot 100 \%.$$

Зависимость  $\delta$  от эффективной толщины для всех образцов приведена на рис. 4.

Видно, что для структур с эффективной толщиной d > 1.8 нм величина  $\delta$  отрицательна, т.е. с ростом температуры проводимость уменьшается, что соответствует металлическому характеру проводимости. Для d < 1.5 нм величина  $\delta$  становит-



Рис. 3. Зависимости  $\operatorname{Re} \varepsilon$  от длины волны возбуждающего излучения для четырех образцов на ситалле с эффективными толщинами 8.40, 17.94, 23.40, 29.64 Å

ся положительной, что соответствует диэлектрическому характеру проводимости островковых систем. Таким образом, эффективная толщина d = 1.5-1.8 нм является перколяционным порогом для исследуемых островковых систем. Важно заметить, что полученное значение пороговой толщины для проводимости островковых систем совпадает с пороговой толщиной, определенной из зависимости Re  $\varepsilon(d)$ . Это также означает, что введенная нами эффективная диэлектрическая проницаемость служит адекватной характеристикой островковых металли-



Рис. 4. Изменение проводимости при изменении температуры образцов на различных подложках в зависимости от их толщины

ческих систем. Отметим, что для образца на кремниевой подложке переход наблюдается при значительно большей толщине слоя пермаллоя. Этот результат здесь мы не рассматриваем, поскольку при расчете не учитывалась собственная проводимость подложки (при комнатной температуре и температуре жидкого азота), которая в данном случае исказила результат. У остальных образцов подложка была диэлектрическая, следовательно, проводимость подложки не оказывала такого влияния.

Таким образом, с помощью двух различных методов (спектральная эллипсометрия и температурные измерения проводимости) при одной и той же эффективной толщине наноостровковой пленки  $d^* \approx 1.5$ –1.8 нм был обнаружен переход диэлектрик-металл, практически не зависящий от подложки. Переход проявлялся в изменении действительной части диэлектрической проницаемости  $\operatorname{Re} \varepsilon$  при  $d > d^*$  с положительного значения (диэлектрическая фаза) на отрицательное (металлическая фаза), а также подтверждался изменением характера dc-проводимости с диэлектрического на металлический при  $d \approx d^*$ . Полученные экспериментальные результаты свидетельствуют о том, что введенная нами эффективная диэлектрическая проницаемость действительно может служить адекватной характеристикой островковых металлических систем.

Авторы выражают благодарность Р. А. Хмельницкому за электронно-микроскопические исследования.

## ЛИТЕРАТУРА

- K.-H. Meiwes-Broer, *Clusters on Surfaces*, Springer-Verlag, Berlin (2000).
- J. L. Dormann, D. Fiorani, F. Giammaria, and F. Lucari, J. Appl. Phys. 69, 5130 (1991).
- K. Shigeto, T. Okuno, K. Mibu et al., Appl. Phys. Lett. 80, 4190 (2002).
- N. A. Djuzhev, N. S. Mazurkin, V. S. Pozdnyakov et al., Semiconductors 49, 1739 (2015).
- R. Villagomez, F. A. Pudonin, and O. Keller, Opt. Comm. 170, 181 (1999).
- R. Villagomez, O. Keller, and F. Pudonin, Phys. Lett. A 235, 629 (1997).
- L. A. Kuzik, V. A. Yakovlev, F. A. Pudonin, and G. Mattei, Surf. Sci. 361/362, 882 (1996).
- А. П. Болтаев, Н. А. Пенин, А. О. Погосов, Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ 123, 1067 (2003).
- А. П. Болтаев, Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ 130, 500 (2006).
- **10**. А. П. Болтаев, Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ **134**, 587 (2008).
- А. П. Болтаев, Ф. А. Пудонин, И. А. Шерстнев, ФТТ 53, 892 (2011).
- A. P. Boltaev, F. A. Pudonin, I. A. Sherstnev et al., J. Magn. Magn. Mater. 428, 132 (2017).
- N. N. Kovaleva, A. A. Gorbatsevich, A. V. Bagdinov et al., arXiv:1512.07993.

- A. Stupakov, A. V. Bagdinov, V. V. Prokhorov et al., J. Nanomater. 2016, ID 3190260 (2016).
- 15. J. M. Talmadge, J. Gao, M. P. Riley et al., Appl. Phys. Lett. 84, 4197 (2004).
- 16. А. П. Болтаев, Н. А. Пенин, А. О. Погосов,
  Ф. А. Пудонин, ЖЭТФ 126, 954 (2004).
- 17. R. M. A. Azzam and N. M. Bashara, *Ellipsometry and Polarized Light*, North-Holland, Amsterdam (1977).
- H. G. Tompkins and E. A. Irene, *Handbook of Ellipsometry*, William Andrew, Norwich, New York (2005).
- 19. M. Walther, D. G. Cooke, C. Sherstan et al., Phys. Rev. B 76, 125408 (2007).
- 20. L. Zhang, C. Israel, A. Biswas et al., Science 298, 805 (2002).