

بررسی ساختاری و مغناطو مقاومت بزرگ در چندلایه‌های الکتروانباشت Co/Cu(Pb)

مرجانه جعفری فشارکی

^۱استادیار گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه پیام نور، تهران

چکیده

در این پژوهش چندلایه‌های Co/Cu(Pb) با روش الکتروانباشت تهیه شدند و ساختار بلوری آنها، همچنین مغناطو مقاومت بزرگ آنها (GMR) مورد بررسی قرار گرفت. چندلایه‌های Co/Cu(Pb) از یک حمام پرکلراید با مقادیر متفاوتی از یون‌های Pb^{2+} در الکترولیت تهیه شدند. الگوهای پراش اشعه ایکس (XRD) پیک‌های ابرشبکه‌ای را در تعدادی از چندلایه‌ها تأیید کردند. یک رفتار نوع فرومغناطیس GMR در چندلایه‌های Co/Cu(Pb) که با مقادیر بسیار کمی از یون‌های Pb^{2+} تهیه شده بود، مشاهده شد، که متناظر با تشکیل ساختار لایه مانند است. اندازه GMR نیز با افزایش غلظت سرب از ۸٪ تا ۱۰٪ کاهش یافت و بنابراین به نوع ابرپارامغناطیس تبدیل شد. در نهایت در غلظت‌های بالای یون‌های Pb^{2+} ، رفتار مغناطو مقاومت به مغناطو مقاومت ناهمسانگرد (AMR) که مشخصه مواد حجیم است تغییر یافت.

Giant Magnetoresistance and Structural Study of Electrodeposited Co/Cu(Pb) Multilayers

Marjaneh Jafari Fesharaki

¹ Assistance Professor, Department of Physics, Payame Noor University, Tehran, Iran

Abstract

In this research Co/Cu(Pb) multilayers have been grown by electrodeposition method and, their structural and giant magnetoresistance (GMR) were investigated. The Co/Cu(Pb) multilayers were deposited from a perchlorate bath with various amount of Pb^{2+} ions in the solution. The X-ray diffraction (XRD) patterns, superlattice satellites could be identified in some of these multilayers. A ferromagnetic type GMR behavior was observed for Co/Cu(Pb) deposits prepared from baths with small Pb^{2+} ion concentration, corresponding to the formation of a layered structure. The GMR magnitude decreased from 8 to 10% with increasing Pb concentration and, also, changed to a superparamagnetic-type GMR; finally, for high Pb^{2+} ion concentration, the magnetoresistance behavior turned over to anisotropic magnetoresistance characteristic of bulk materials. PACS No. 61.10, 75, 75.20

مقدمه

مغناطش در دولایه‌ای مغناطیسی مربوط می‌شود که به اسپین الکترون که یک خاصیت کوانتومی است وابسته است. از سوی دیگر GMR یکی از دستاوردهای مهم در نانو فیزیک است. زیرا این اثر در چندلایه‌ای‌هایی ظاهر می‌شود که ضخامت هر کدام از این لایه‌ها تنها چند اتم از یک فلز مغناطیسی (مانند آهن، نیکل یا کبالت) و یک فلز غیرمغناطیسی (مانند مس، پلاتین یا کروم) است. در سال‌های اخیر ساخت وسایل جدید بر مبنای نانوساختارها

اثر مغناطو مقاومت بزرگ (GMR) در فیلم‌های چندلایه‌ای الکتروانباشت به شدت در دو دهه‌ی اخیر مورد مطالعه قرار گرفته است. GMR در لایه‌های نازک فرومغناطیس رخ می‌دهد که توسط لایه‌های غیرمغناطیسی یا پادفرومغناطیسی از یکدیگر جدا شده‌اند. لذا این اثر وابستگی شدیدی به جفت‌شدگی تبادل بین لایه‌ای دارد. جفت‌شدگی تبادل بین لایه‌ای به جهت نسبی بردارهای

[Si/Cr(nm)/Cu(Si/Cr(۵nm)/Cu(۲۰nm)] پوشش داده شده است. چندلایه‌های Co/Cu(Pb) در مد ترکیبی گالوانواستات/پتانسیواستات (G/P) تهیه شدند. ضخامت اسمی لایه‌های مغناطیسی و غیرمغناطیسی برای چندلایه‌های الکتروانباشت Co/Cu(Ag) به ترتیب ۳nm و ۷nm بود [۵۶]. تعداد دولایه‌های تکرار شده ثابت، طوری که ضخامت اسمی کل چندلایه‌ها برابر ۸۰۰nm باشد. ساختار چندلایه‌های Co/Cu(Pb) توسط الگوی پراش اشعه ایکس (XRD) با پرتو $\text{Cu-K}\alpha$ ساخت شرکت فیلیس انجام شد. مشخصات مغناطیسی مقاومت (MR) نمونه‌های انباشت یافته در دمای اتاق انجام شد. اندازه‌گیری‌های MR با پروب چهار نقطه‌ای در میدان مغناطیسی خارجی $H=1\text{kOe}$ با پیکربندی میدان در صفحه، جریان در صفحه انجام شد. اندازه‌گیری‌های MR هم برای مغناطیسی مقاومت طولی (LMR) و هم برای مغناطیسی مقاومت عرضی (TMR) انجام شد که در LMR میدان مغناطیسی موازی با جریان الکتریکی و در TMR میدان مغناطیسی عمود بر جریان الکتریکی است. نسبت MR به صورت [۴]:

$$\frac{\Delta R}{R_0} = [R(H) - R_0] / R_0 \quad (1)$$

تعریف می‌شود، که $R(H)$ و R_0 به ترتیب مقادیر مقاومت در میدان مغناطیسی H و خارج از میدان مغناطیسی است.

بحث و نتایج

الگوهای XRD برای تعدادی از چندلایه‌ها با غلظت‌های یونی متفاوت Pb^{2+} ، همچنین برای محلول‌های ۰/۲M و ۰/۴M حمام پرکلراید اندازه‌گیری شد. همان طور که در شکل ۱ دیده می‌شود، تمام الگوهای XRD ساختار مکعبی مرکز سطحی (fcc) را تأیید می‌کنند. یک پیک بسیار قوی (۱۱۱) در هر نمونه مشاهده شده است. پیک‌های XRD در نزدیک این پیک اصلی (۱۱۱) برای چندلایه‌های Co/Cu در شکل ۱-a، برای سه نمونه تهیه شده بدون افزودن Pb^{2+} به حمام پرکلراید نشان داده شده است.

چندلایه‌های تهیه شده با محلول ۰/۴M، حاکی از حضور پیک‌های ماهواره‌ای $S(-1)$ و $S(+1)$ است [۵]. از آن جایی که ضخامت دولایه‌های تکرار شده ($\Lambda_{\text{nom}}=10\text{nm}$) نسبتاً زیاد است، لذا

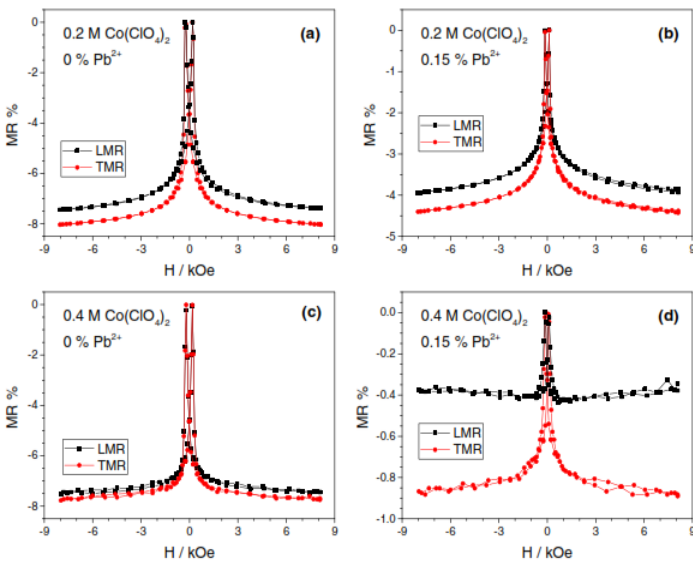
تجاری شده است و از آن‌جا که عملکرد این ساختارها بر اساس دو حالت اسپینی الکترون‌ها (اسپین بالا و پایین) می‌باشد، لذا چنین وسایل نانو مقیاس اساس اسپین ترونیک را تشکیل می‌دهند. برای بهبود مشخصه‌های GMR در چندلایه‌های الکتروانباشت، توجه به پارامترهای مؤثر در انباشت بسیار حائز اهمیت است [۱]. در کارهای گزارش شده‌ی قبلی متوجه شدیم که به کارگیری Pb به عنوان یک عنصر سورفاکتانت می‌تواند اثر عمیق و ویژه‌ای را در کیفیت چندلایه‌های Co/Cu داشته باشد [۳،۲] که تقریباً موجب رشد دانه‌بندی آزاد و حتی ضخامت لایه شده است و در نهایت موجب بهتر شدن ویژگی‌های آنتی فرومغناطیس قوی‌تر و GMR بالاتر شده است. لذا پژوهش موجود نتایج آزمایشات ما را در الکتروانباشت چندلایه‌های Co/Cu(Pb) از یک حمام پایه‌ی کلراید با هدف نشان دادن تأثیر Pb موجود در لایه‌ی جدا کننده روی ساختار بلورین و GMR چندلایه‌ها نشان می‌دهد.

روش‌های آزمایشی

چندلایه‌های Co/Cu(Pb) از حمام پرکلراید با روش الکتروانباشت تهیه شدند. دو نوع محلول در این آزمایشات به کار گرفته شد؛ اولین محلول شامل: $2 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ یا 0.2 mol dm^{-3} $\text{Cu}(\text{ClO}_4)_2$ ، $3 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ H_3BO_3 و $3 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ $\text{Pb}(\text{ClO}_4)_2$ و pH در ۴/۵۵ تنظیم شده است. ترکیبات دومین محلول و غلظت‌های یونی آنها کاملاً مشابه اولین محلول است با این تفاوت که به جای $\text{Cu}(\text{ClO}_4)_2$ از $\text{Pb}(\text{ClO}_4)_2$ با همان غلظت یونی استفاده شد. به منظور بررسی تأثیر غلظت یونی فلز مغناطیسی Co در فرآیند دانه‌بندی در حین تشکیل لایه‌ها، $\text{Co}(\text{ClO}_4)_2$ نیز با غلظت‌های مختلف $3 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ و $4 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ استفاده شد. در نهایت، مخلوط مناسبی از هر دو محلول پرکلراید را برای تهیه الکتروانباشت چندلایه‌های Co/Cu(Pb) با غلظت‌های مختلف Pb در لایه جدا کننده استفاده شد. یک دستگاه پتانسیواستات/گالوانواستات نوع EF453 (Electroflex) به عنوان منبع جریان به کار گرفته شد. کالومل اشباع (SCE) به عنوان الکتروود مرجع و ورقه‌های مسی به عنوان الکتروود شمارنده استفاده شد. زیرلایه‌ها و یفره‌هایی از سیلیکون با جهت (۱۰۰) بوده که به روش تبخیر با لایه‌هایی از کروم و مس

ضخامت اسمی دولایه‌ای برای همه چندلایه‌ای‌ها یکسان است ($\Lambda_{nom} = 10 \text{ nm}$)، موقعیت شانه‌ها (پیک‌های ماهواره‌ای) نیز باید یکسان باشد. دو خط عمودی در شکل ۱-**b** کمک می‌کند تا تجسم کنیم که در غلظت یونی 0.03% از Pb^{2+} پیک‌های ماهواره‌ای می‌توانند حضور داشته باشند، اما آنها ممکن است برای غلظت‌های یونی 0.15% از Pb^{2+} ناپدید شوند. افزودن مقدار کمی (0.03%) از یون‌های Pb^{2+} به حمام با غلظت 0.2 M موجب کاهش مقدار Cu با توجه به انباشت Co و همینطور در لایه مغناطیسی می‌شود.

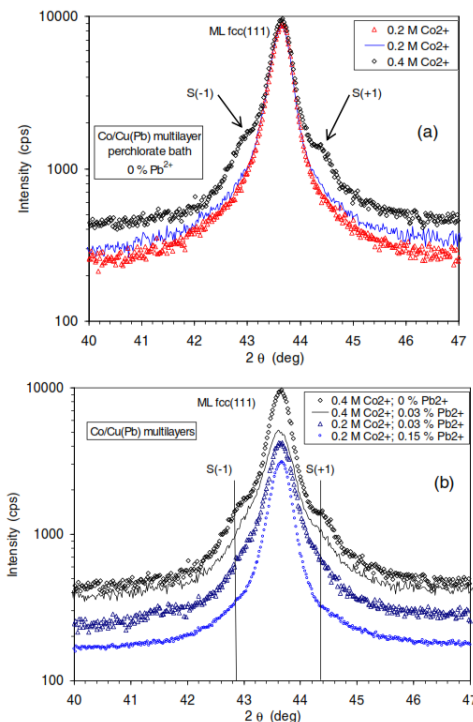
مغناطو مقاومت طولی (LMR) و عرضی (TMR) برای چندلایه‌ای‌های Co/Cu(Pb) در غلظت‌های مختلف Pb^{2+} بررسی شد. در غلظت‌های پایین Pb^{2+} ، چندلایه‌ای‌ها اثر GMR نشان دادند ($\text{TMR} < 0$ ، $\text{LMR} < 0$)، در حالی که در غلظت‌های بالای یون Pb^{2+} اثر مغناطو مقاومت ناهمسانگرد (AMR) ($\text{TMR} < 0$)، $\text{LMR} > 0$ [۶،۷] مشاهده شد. گستره گذار از GMR به AMR (شکل ۳) در غلظت‌های بین 0.25% تا 0.5% یون Pb^{2+} بوده است و از هر سری تا سری دیگر متغیر است.



شکل ۲: منحنی‌های MR(H) اندازه‌گیری شده برای چهار چندلایه‌ای $\text{Co(3nm)/Cu-Pb(7nm)}$ تهیه شده از غلظت‌های مختلف Pb^{2+} (مربع‌ها دلالت بر LMR و دایره‌ها دلالت بر TMR دارند).

شکل ۲ همچنین حاکی از تفاوت واضحی در رفتار تکاملی میدان مغناطو مقاومت برای محلول‌های 0.2 M و 0.4 M است. برای محلول 0.4 M ، یک اشباع کامل در منحنی‌های MR(H) در میدان‌های مغناطیسی نسبتاً پایین مشاهده می‌شود (در میدان بالای حدود

حضور پیک‌های ماهواره‌ای بهتر مخفی است اما همچنان نزدیک به پیک اصلی است [۵]. بازتاب‌های ماهواره‌ای ضعیف یا غیرقابل رؤیت برای نمونه‌های تهیه شده با محلول 0.2 M ، بر خلاف نمونه‌های تهیه شده با محلول 0.4 M ، حاکی از این حقیقت است که در غلظت‌های یونی پایین Co^{2+} ، مقدار Cu که در لایه مغناطیسی ترکیب می‌شود مطمئناً بالاتر است (زیرا ثابت بودن مقدار چگالی جریان انباشت لایه مغناطیسی حاکی از این مطلب است) که بالاتر بودن مقدار Cu ممکن است موجب چنین درجه بالایی از بی‌نظمی ساختاری شود که نهایتاً موجب فقدان ساختار مربوط در حین رشد جهتی شود و بنابراین یکی از شرایط مهم برای پیدایش بازتاب‌های ماهواره‌ای دیگر انجام نمی‌شود.



شکل ۱: (a) چندلایه‌ای‌های تهیه شده بدون افزودن Pb^{2+} پیکان‌ها اشاره به شانه‌های ناشی از بازتاب‌های ماهواره‌ای $\text{S}(-1)$ و $\text{S}(+1)$ دارند، (b) چندلایه‌ای‌های تهیه شده با افزودن مقادیر مختلف Pb^{2+} . دو خط عمودی پررنگ دلالت بر مکان‌های تقریبی شانه‌های ناشی از بازتاب‌های ماهواره‌ای چندلایه‌ای $\text{S}(-1)$ و $\text{S}(+1)$ دارد.

شکل ۱-**b**، الگوهای XRD سه لایه با اضافه شدن یون Pb^{2+} به حمام را نشان می‌دهد. برای مقایسه الگوی XRD با پیک‌های ماهواره‌ای شکل ۱-**a** (نمونه تهیه شده با محلول 0.4 M و غلظت 0% از Pb^{2+}) نیز به شکل ۱ اضافه شده است. از آنجایی که

قابل مقایسه است که در گستره چند دهم درصد، افزودن یون‌های Ag^{2+} به حمام یک افزایش قابل ملاحظه‌ای را در مقدار GMR به بار می‌آورد.

نتیجه‌گیری

در پژوهش حاضر، تأثیر هم‌انباشت Pb در الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های Co/Cu روی ساختار و GMR بررسی شد. الگوهای XRD ثبت شده برای تعداد کمی چندلایه‌ای‌های Co/Cu(Pb) انتخاب شده، دلالت بر ساختار ابرشبه‌کریستال fcc با پیک قوی (۱۱۱) دارد. در بعضی موارد، شانه‌ها در هر دو طرف بازتاب (۱۱۱) در مکان‌هایی تقریباً متناظر با پیک‌های ماهواره‌ای با $\Lambda_{nom} = 1.0 \text{ nm}$ است. یک اثر GMR واضح در چندلایه‌ای‌های تهیه شده از الکترولیت پرکلراید تا یک غلظت مشخصی از یون Pb^{2+} مشاهده شد که در بالای آن تنها اثر AMR دیده می‌شود. گذار از GMR به AMR در غلظت‌های ۰/۲٪ یون Pb^{2+} رخ می‌دهد. برای محلول ۰/۴M و غلظت‌های بسیار بالای یون Pb^{2+} ، GMR مشاهده شده اغلب با سهم FM آشکار می‌شود. این رفتار GMR برای چندلایه‌ای‌ها به دلیل پراکندگی وابسته به اسپین الکترونی است که میان دو منطقه فرومغناطیسی مجاور هم با مغناطش غیر هم راستا جابه‌جا میشوند.

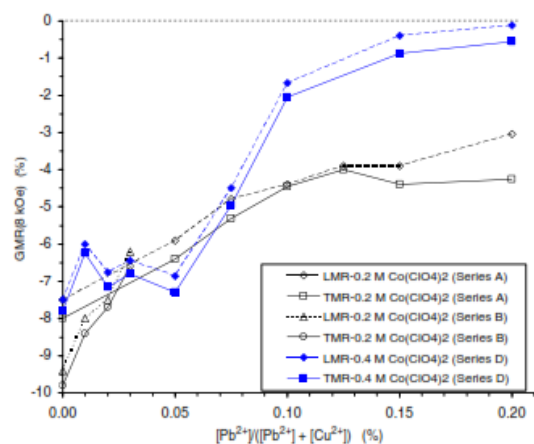
سپاسگزاری

نویسنده مقاله از مؤسسه تحقیقاتی اپتیک و حالت جامد شهر بوداپست (مجارستان) برای اندازه‌گیری‌های مغناطی مقاومت و الگوهای XRD و از دانشگاه پیام نور زرین شهر برای آزمایشات الکتروانباشت قدردانی می‌نماید.

مرجع‌ها

- [1] I. Bakonyi and L. Peter, Prog. Mater Sci, **55** (2010) 107-245.
- [2] J. Camarero, L. Spender, G. Schmidt, K. Heinz, J.J. de Miguel and R. Miranda, Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 2448.
- [3] J. Camarero, T. Graf, J.J. de Miguel, R. Miranda, W. Kuch, M. Zharnikov, A. Dittschner, C.M. Schneider and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 4428.
- [4] M. Jafari Fesharaki, L. Peter, T. Schuchknecht, G. Nabyouni and I. Bakonyi, J. Electrochem. Soc **159** (2012) D162-D171.
- [5] E.E. Fullerton, I.K. Schuller, H. Vanderstraeten and Y. Bruynserade, Physical Review B, **45** (1992) 9292.
- [6] T.R. McGuire and R.I. Potter, IEEE Trans. Magn. **11** (1975) 1018.
- [7] B. Raquet, M. Viret, J.M. Broto, E. Sondergard, O. Cespedes and R. Mamy, J. Appl. Phys **91** (2002) 8129.
- [8] I. Bakonyi, L. Péter, Z. Rolik, K. Kiss-Szabó, Z. Kupay, J. Tóth, L.F. Kiss and J. Pádár, Phys. Rev. B **70** (2004) 054427.
- [9] K. Neuróhr, L. Péter, L. Pogány, D. Rafaja, A. Csik, K. Vad, G. Molnár, I. Bakonyi, J. Electrochem. Soc **162** (2015) D331.

۲kOe، تقریباً به طور خطی کاهش می‌یابد که به همین دلیل فرایند paraprocess غالباً نامیده می‌شود). این میدان اشباع پایین دلالت بر این دارد که GMR مشاهده شده می‌تواند به پراکندگی وابسته به اسپین الکترونها در ساختارهای لایه مانند نسبتاً خوب متشکل از لایه‌های متناوباً فرومغناطیسی و لایه‌های جداکننده غیرمغناطیسی نسبت داده شود [۸]. از سوی دیگر، برای نمونه‌های چندلایه‌ای تهیه شده با محلول ۰/۲M، اشباع تنها در میدان‌های مغناطیسی بالاتر رخ می‌دهد و خاصیت اشباع ناپذیری با افزایش مقدار Pb^{2+} حتی قوی‌تر هم می‌شود. این رفتار قویاً با نتایج مشاهده شده برای چندلایه‌ای‌های Co/Cu(Ag) تهیه شده با همان غلظت محلول پرکلراید [۹] همخوانی دارد. منحنی‌های اشباع ناپذیر MR(H) به دلیل حضور سهم ابرپارامغناطیسی (SPM) از GMR ایجاد می‌شوند [۸]. بالاتر بودن سهم SPM در چندلایه‌ای‌های تهیه شده از غلظت (۰/۲M) ممکن است به بالاتر بودن مقدار عنصر غیرمغناطیسی در لایه‌های مغناطیسی همانطوری که در بالا هم بحث شد نسبت داده شود. شکل ۳ نیز نشان می‌دهد که اندازه GMR چندلایه‌ای‌های تهیه شده بدون Pb^{2+} همان نتایج قبلی به دست آمده در مطالعه چندلایه‌ای‌های Co/Cu(Ag) را مجدداً نشان می‌دهند [۹].



شکل ۳: مقادیر LMR و TMR اندازه‌گیری شده در میدان مغناطیسی $H = \lambda kOe$ به عنوان تابعی از غلظت یون Pb^{2+} برای چندلایه‌ای‌های Co(3nm)/Cu-Pb(7nm) تهیه شده از محلول پرکلراید ۰/۴M و ۰/۲M برای چندلایه‌ای‌های Co/Cu(Pb). GMR فوراً با اضافه مقدار کمی از یون‌های Pb^{2+} به حمام (به کمی ۰/۰۱٪) کاهش می‌یابد. این نتیجه با رفتار الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های Co/Cu(Ag) [۹]