

## ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 539.216.2:537.624

### ЭВОЛЮЦИЯ СТРУКТУРНЫХ И МАГНИТОТРАНСПОРТНЫХ СВОЙСТВ ПЛЕНОК МАГНЕТИТА В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ ИХ СИНТЕЗА НА ПОВЕРХНОСТИ SiO<sub>2</sub>/Si(001)

© 2017 г. В. В. Балашев<sup>a, b, \*</sup>, В. А. Викулов<sup>a</sup>, А. А. Димитриев<sup>a, b</sup>, Т. А. Писаренко<sup>a, b</sup>,  
Е. В. Пустовалов<sup>b</sup>, В. В. Коробцов<sup>a, b</sup>

<sup>a</sup>Институт автоматики и процессов управления ДВО РАН, 690041 Владивосток, ул. Радио, 5

<sup>b</sup>Школа Естественных Наук Дальневосточного федерального университета, 690950 Владивосток, ул. Суханова, 8

\*e-mail: balashev@mail.dvo.ru

Поступила в редакцию 11.07.2016 г.

После доработки 26.10.2016 г.

Используя методы дифракции электронов на просвет и на отражение, исследована структура пленок Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> в зависимости от температуры их синтеза на подложке Si, покрытой ультратонким слоем SiO<sub>2</sub>. Выращенные поликристаллические пленки магнетита имели текстуру, ось которой была перпендикулярна поверхности пленки SiO<sub>2</sub>. Обнаружено, что с увеличением температуры роста происходит структурное упорядочение, которое характеризуется увеличением объемной доли зерен с преимущественной (311)-ориентацией. Исследование магнитотранспортных свойств пленок показало, что величина магнитосопротивления увеличивается с ростом температуры их синтеза. Установлено, что в системе Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si с туннельно-тонким слоем SiO<sub>2</sub> величина магнитосопротивления уменьшается в результате протекания электрического тока по каналу в подложке кремния.

*Ключевые слова:* магнетит, текстура, дифракция быстрых электронов, магнитосопротивление

DOI: 10.7868/S0015323017050023

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

Благодаря полной спин-поляризации электронов [1] и высокой температуре Кюри (~580°C), магнетит (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) является перспективным материалом для такого нового направления современной электроники, как спинтроника [2, 3]. Исследование магнитных и электрических свойств пленок Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, выращенных на различных подложках, вызывает повышенный интерес. Показано, что пленки магнетита могут расти как эпитаксиально, в случае таких подложек как α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, GaAs, MgO [4–7], так и иметь поликристаллическую структуру для подложек Si, SiO<sub>2</sub>, GaAs [8–12]. Рост пленок Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> на подложках кремния представляет интерес с точки зрения формирования гетероструктуры ферромагнетик/полупроводник и возможности инжекции спин-поляризованных электронов в полупроводник [3]. Пленки Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, выращенные на чистой поверхности Si и покрытой слоем SiO<sub>2</sub>, имеют поликристаллическую структуру, которая не зависит от способа осаждения пленки (импульсное лазерное осаждение (PLD), магнетронное распыление и т.д.) и условий роста. С другой стороны, исследованные пленки могут характеризоваться как полной разориентацией зерен в них [13, 14], так и преимущественной кристаллографической ориентацией зерен [15–18], т.е. иметь текстуру.

Анализ литературных данных показывает, что преимущественная ориентация зерен в пленках с текстурой может зависеть от экспериментальных условий роста. Так, в случае PLD [8, 19], (111)-текстуру наблюдали независимо от типа подложки. С другой стороны, в работе [19] обнаружено, что при понижении температуры роста до 150°C в пленках с (111)-текстурой наблюдается появление (311)-ориентации у зерен. Часто исследование магнитных и электрических свойств проводится в зависимости от толщины выращенных пленок Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> или фазового состава пленок оксида железа, который меняется в зависимости от экспериментальных условий синтеза пленок. В то же время данные о влиянии структурно-морфологических свойств пленок Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> на магнитотранспортные свойства практически отсутствуют. В работах [17, 20] было обнаружено, что в зависимости от условий роста текстурированной пленки Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> на окисленной поверхности Si, как при магнетронном распылении [17], так и реактивном осаждении Fe в атмосфере O<sub>2</sub> [20], ориентация зерен может изменяться. Авторами работы [17] установлено, что структурное изменение приводит к изменению магнитных и транспортных свойств пленки.

В ранее опубликованной нами работе [21] из анализа данных рамановской спектроскопии и магнитных измерений было показано, что увели-

чение температуры синтеза текстурированных пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  приводит к структурному упорядочению и увеличению эффективной намагниченности вследствие уменьшения доли дефектов в объеме пленки. В настоящей работе для детального исследования эволюции структурного упорядочения был проведен анализ как картин дифракции быстрых электронов, так и просвечивающей электронной микроскопии. Кроме того, исследованы магнитотранспортные свойства пленок в зависимости от температуры их синтеза.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Эксперименты проводили на сверхвысоковакуумной установке “Катунь”, оснащенной системами дифракции быстрых электронов (ДБЭ) на отражение и спектральной эллипсометрии. Базовое давление не превышало  $10^{-10}$  Торр. Ускоряющее напряжение электронного пучка для метода ДБЭ составляло 20 кВ, а угол падения пучка к поверхности подложки не превышал  $1^\circ$ . В качестве подложек использовали монокристаллические пластины кремния ( $0.5 \times 10 \times 20 \text{ мм}^3$ ) *n*-типа (7.5 Ом см) с ориентацией (001). До загрузки в вакуумную камеру поверхность образцов была очищена, используя влажную химическую обработку [22]. На заключительной стадии очистки на поверхности подложек Si формировали ультратонкий слой  $\text{SiO}_2$  в азотной кислоте (68%  $\text{HNO}_3$ ) при  $121^\circ\text{C}$  в течение 10 мин. Согласно данным эллипсометрии и работы [23], толщина слоя  $\text{SiO}_2$ , полученного данным способом, составляет  $\sim 1.5$  нм. После загрузки в вакуумную камеру образец предварительного прогрели при  $500^\circ\text{C}$  в течение 1 ч. Осаждение Fe на поверхность  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  проводили путем его термического испарения из ячейки Кнудсена с тиглем из оксида алюминия ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). В процессе роста пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  на поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  скорость осаждения Fe составляла  $\sim 1.2$  нм/мин, а давление  $\text{O}_2$  в вакуумной камере поддерживали на уровне  $\sim 1.3 \times 10^{-6}$  Торр. Толщина пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенных в диапазоне температур  $200\text{--}400^\circ\text{C}$ , составляла 100 нм.

Электронно-микроскопические исследования выполняли на просвечивающем электронном микроскопе Zeiss Libra 200 HR FE при ускоряющем напряжении 200 кВ. Эксперименты по получению картин электронной дифракции выполняли от выбранного участка образца (selected area electron diffraction (SAED)) размером  $200\text{--}500$  нм.

Для исследования магнитотранспортных свойств пленок, полученных при разных температурах, нами было проведено измерение их проводимости в зависимости от величины приложенного внешнего магнитного поля. Измерения проводили при комнатной температуре (КТ) на образцах размером  $5 \times 10 \text{ мм}^2$  стандартным 4-х зондовым методом при фиксированном по-

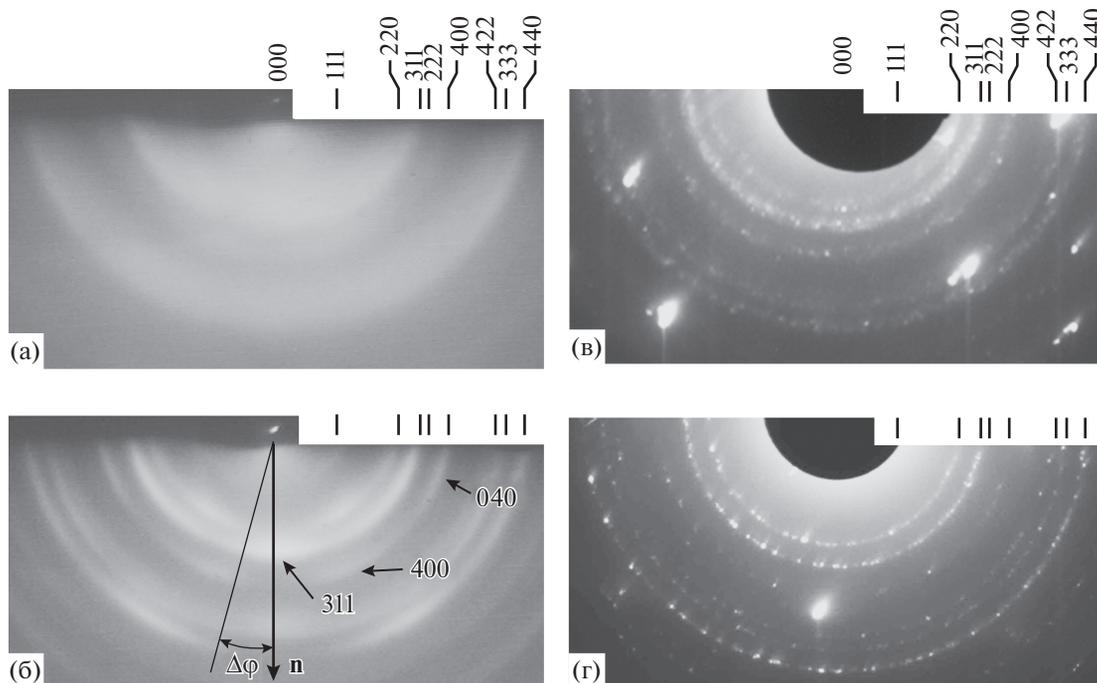
стоянном токе  $j = 1$  мкА. Для исследования был использован источник-измеритель Keithley-2400. Зондовые электроды диаметром 0.2 мм были сформированы на поверхности пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  термическим испарением Al через металлическую маску и расположены коллинеарно с шагом 1 мм. Магнитное поле прикладывали вдоль плоскости пленки, а его величину варьировали от  $-0.4$  до  $0.4$  Тл.

## 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

**3.1. Структурный анализ пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .** На рис. 1 показаны картины дифракции электронов, полученные методами ДБЭ и электронной микроскопии от пленки магнетита, выращенной на поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  при температурах 200 и  $400^\circ\text{C}$ . Данные картины показывают такие же дифракционные кольца Дебая, характерные для поликристаллических пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , как и в случае дифракции на просвет от пленок, выращенных без нагрева подложки [12]. В то же время хорошо видно, что существует качественное различие между тем, как распределена интенсивность вдоль колец в случае ДБЭ и электронной микроскопии.

Картинки дифракции ДБЭ на рис. 1а и 1б были получены при угле падения электронного пучка к плоскости поверхности, близком к  $0^\circ$ . Так как рост зерен поликристаллической пленки происходит вдоль направления нормали (**n**) к поверхности [24] (рис. 2а), то угол между направлением волнового вектора падающего пучка (**k**<sub>0</sub>) и направлением роста зерен является практически нормальным ( $\sim 90^\circ$ ). Дифракция электронов на просвет в случае ДБЭ может возникать только при наличии шероховатости, образованной выступающими над поверхностью пленки зернами  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . С другой стороны, в случае электронной микроскопии (рис. 2а) волновой вектор падающего пучка (**k**<sub>0</sub>) направлен вдоль нормали (**n**) к поверхности (вдоль направления роста зерен), а регистрация дифракционной картины происходит с обратной стороны подложки Si(001). В этом случае дифракция электронов происходит внутри всего объема зерен  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , а не только их приповерхностной области.

Так как латеральные размеры зерен приблизительно в 4–5 раз [21] превышают среднее значение высоты поверхностной шероховатости, то резкость колец, полученных электронной микроскопией (рис. 1в, 1г), выше по сравнению с кольцами в случае ДБЭ (рис. 1а, 1б). Кроме того, на картинах дифракции можно видеть присутствие точечных дифракционных пятен на кольцах, что связывается с эффектом преломления на зернах, имеющих огранку и, как следствие, более совершенную структуру [25]. В выбранной для дифракции области присутствуют зерна больших размеров, что увеличивает интенсивность и локальность отдельных дифракционных отражений в кольце. В целом, в области анализа структуры



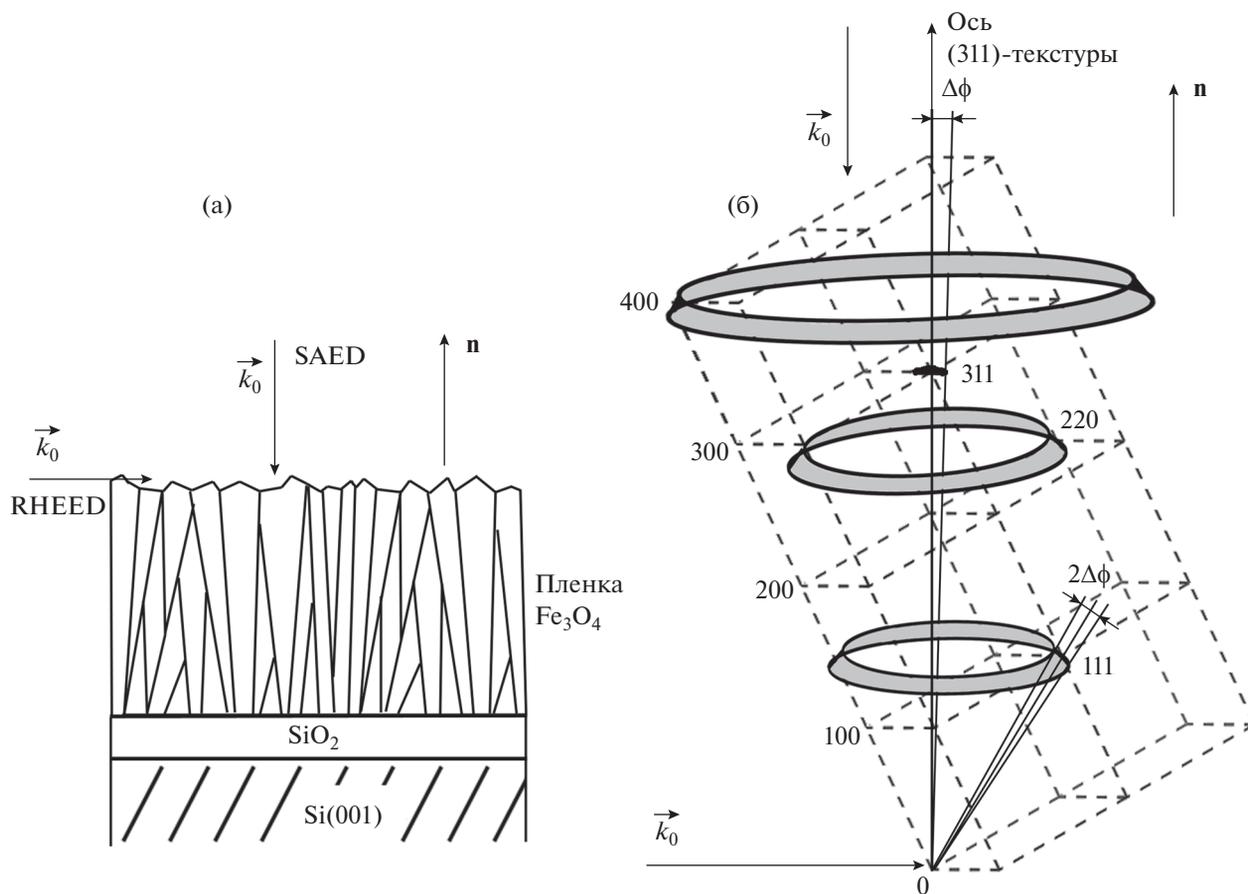
**Рис. 1.** Картины дифракции электронов от пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , полученные методом ДБЭ, (а) и (б), и электронной микроскопии, (в) и (г). Пленке, выращенной при  $200^\circ\text{C}$ , соответствуют картины дифракции (а) и (в), при  $400^\circ\text{C}$  – (б) и (г).

(200–500 нм), картины дифракции не показывают какой-либо преимущественной ориентации зерен, так как интенсивность колец дифракции, в среднем, равномерна. Обнаружено, что увеличение температуры роста до  $400^\circ\text{C}$  приводит к увеличению как резкости колец, так и яркости точечных рефлексов. Данный факт может быть напрямую связан с ростом крупных зерен с более выраженной огранкой.

Из рис. 1а и 1б видно, что кольца Дебая в случае ДБЭ характеризуются неравномерным распределением интенсивности, что выражается наличием дуг. Как показано в нашей предыдущей работе [26], симметричное положение дуг относительно нормали согласуется с теоретической картиной дифракции для пленки с (311)-текстурой, ось которой совпадает с нормалью к поверхности пленки. В случае этой текстуры зерна пленки ориентированы таким образом, что направление [311] их кристаллической решетки располагается, преимущественно, вдоль нормали (рис. 2б). Ось текстуры в этом случае совпадает с нормалью к поверхности. Так как решетка зерен имеет случайную ориентацию относительно оси текстуры, то узлы обратной решетки ( $hkl$ ) будут располагаться вдоль линии колец. Как видно из рис. 2б, на примере узлов решетки (111), (220) и (400), отклонение направления [311] относительно оси текстуры в пределах некоторого угла ( $\pm\Delta\phi$ ) будет приводить к уширению колец на угол  $2\Delta\phi$ . В случае ДБЭ сфера Эвальда, проходящая вдоль оси текстуры (перпендикулярно вектору  $\mathbf{k}_0$ ), пересекает данные кольца.

Места пересечения колец со сферой Эвальда определяют направления векторов рассеянных волн. Это приводит к появлению на картине ДБЭ дифракционных дуг (111), (220), (400) и т.д., расположенных симметрично относительно оси текстуры (/нормали к поверхности  $\mathbf{n}$ ), как видно из рис. 1а и 1б. Угловое положение ( $\angle\phi$ ) данных дуг относительно нормали должно составлять  $29.5^\circ$ ,  $31.5^\circ$  и  $25.2^\circ$ . Так как для (311) текстуры направление [311] располагается преимущественно вдоль нормали к поверхности, то и соответствующая дуга (311) также располагается на нормали ( $\angle\phi = 0$ ). Следует отметить, что в кубической решетке зерен присутствуют также узлы с индексами  $(3\bar{1}1)$ ,  $(3\bar{1}\bar{1})$  и  $(13\bar{1})$  угловое положение которых относительно направления (311) составляет  $\sim 35^\circ$ ,  $50^\circ$  и  $63^\circ$ . Соответствующие им дуги располагаются на картине ДБЭ (рис. 1а и 1б) симметрично относительно (311) дуги. Как видно из рис. 1а и 1б, совокупность дуг (311),  $(3\bar{1}1)$ ,  $(3\bar{1}\bar{1})$  и  $(13\bar{1})$  образует практически сплошное по интенсивности кольцо (311).

В случае ПЭМ отсутствие дуг и однородное распределение интенсивности колец Дебая объясняется двумя причинами. Во-первых, дифракцией электронов в зернах  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  с хаотической ориентировкой, которые присутствуют в нижнем слое пленки при конкурентной моде роста [24]. Вторая причина связана с геометрией дифракции, при которой вектор  $\mathbf{k}_0$  совпадает с осью текстуры (рис. 2б), характерной для верхнего слоя



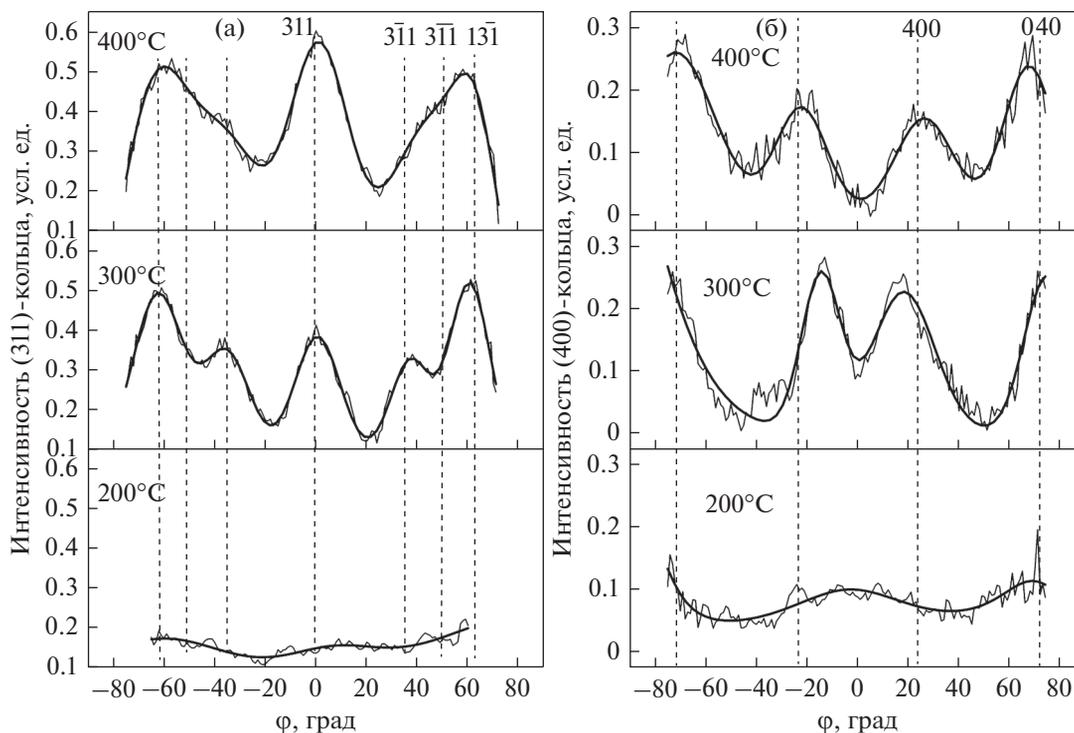
**Рис. 2.** Схематическое изображение направления волнового вектора падающего электронного пучка ( $\mathbf{k}_0$ ) относительно пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  в случае дифракции быстрых электронов (RHEED) и дифракции электронов на просвет от выбранного участка пленки (SAED) — а. Ориентация обратной решетки в случае идеальной (311) текстуры, когда ось текстуры и направление [311] совпадают — б.

пленки. В этом случае, согласно работе [25], также должны наблюдаться непрерывные кольца за тем лишь исключением, что некоторые из них должны отсутствовать. Так как текстура для верхнего слоя пленки не идеальная ( $\Delta\phi \neq 0$ ), а зерна нижнего слоя имеют хаотическую ориентировку, то полное исчезновение каких-либо колец не должно наблюдаться. В связи с тем, что появление отчетливых дуг на картине ДБЭ мы наблюдали только после осаждения 25–30 нм, то можно предположить, что толщина нижнего слоя с хаотической ориентировкой зерен не превышает эти значения.

Для получения количественной информации о влиянии температуры роста пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  на текстуру, или степень упорядоченности зерен в пленке, нами было проведено измерение относительного изменения интенсивности дуг, а также их положения относительно нормали. С этой целью было проведено измерение углового распределения интенсивности колец (311) и (400) от картин ДБЭ, полученных при 200 (рис. 1а), 300 и 400°C (рис. 1б). На рис. 3 представлены соответствующие угловые распределения интенсивности колец (311) и (400). Нормировка интенсивности

колец была выполнена по методике, предложенной в работе [27]. Штриховыми линиями отмечены теоретические положения дуг относительно нормали к поверхности для (311) текстуры. Как было сказано выше, дифракционное кольцо (311) должно включать дуги (311), ( $3\bar{1}1$ ), ( $31\bar{1}$ ) и ( $13\bar{1}$ ) для которых  $\angle\phi$  составляет  $0^\circ$ ,  $\pm 35^\circ$ ,  $\pm 50^\circ$  и  $\pm 63^\circ$  (рис. 3а). Так как оси решетки магнетита [400] и [040] располагаются под углом  $\sim \pm 25^\circ$  и  $\pm 72^\circ$  относительно оси [311], то на картине дифракции должны наблюдаться дуги от соответствующих узлов решетки (рис. 3б).

После осаждения при 200°C, как видно из рис. 3а, интенсивность кольца (311), практически не зависит от угла  $\phi$ . Напротив, для кольца (400) (рис. 3б) наблюдается незначительный пик для  $\angle\phi = 0^\circ$ . В случае роста пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  при 300°C для  $\angle\phi = 0^\circ$  появляется интенсивный пик, соответствующий дуге (311) (рис. 3а). При этой температуре роста кривая интенсивности для кольца (400) (рис. 3б) характеризуется появлением двух симметричных пиков, расположенных под углом  $\sim \pm 16^\circ$  относительно нормали к поверхности. Эти



**Рис. 3.** Распределение интенсивности колец Дебая (311) (а) и (400) (б) относительно нормали к поверхности ( $\varphi = 0^\circ$ ) для пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , полученных при разных температурах роста. Положение пунктирных линий соответствует угловому положению дуг на кольцах в случае (311)-текстуры.

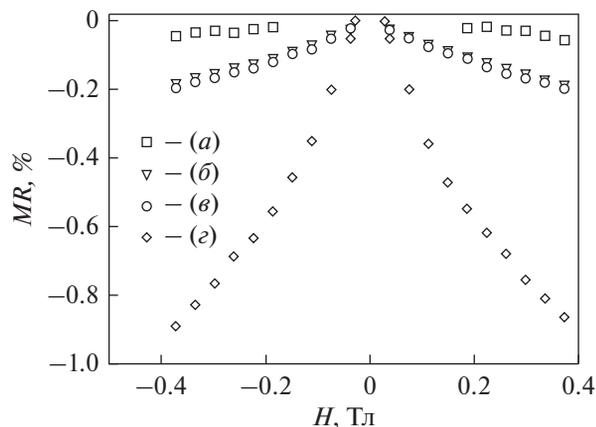
значения углов приблизительно на  $9^\circ$  меньше теоретических значений положения дуг (400) для (311)-текстуры. Только при увеличении температуры роста до  $400^\circ\text{C}$  положения пиков, соответствующих дугам (400), достигают теоретических значений  $\pm 25^\circ$ . Это сопровождается увеличением интенсивности пика (311) почти в 1.5 раза по сравнению с его значением при  $300^\circ\text{C}$ . Установлено, что ширина этого пика ( $2\Delta\varphi$ ) составляет  $\sim 30^\circ$ , как при температуре роста  $300^\circ\text{C}$ , так и при  $400^\circ\text{C}$ . Данный факт говорит о том, что температура роста не влияет на разориентацию зерен относительно оси текстуры (/нормали к поверхности), а угловое отклонение ( $\Delta\varphi$ ) направления [311] от оси текстуры составляет  $\sim 15^\circ$ .

Мы полагаем, что с увеличением температуры роста пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  объемная доля зерен, имеющих ориентацию (311), увеличивается, что сопровождается как ростом интенсивности дуги (311) для  $\angle\varphi = 0^\circ$ , так и смещением дуг (400) к соответствующим для них теоретическим положениям. Так, при  $400^\circ\text{C}$  (рис. 3б) зерна пленки, преимущественно, имеют ориентацию (311), а (400) и (040) узлы/дуги решетки располагаются под углом  $\sim \pm 25^\circ$  и  $\pm 72^\circ$  относительно оси текстуры (нормали к поверхности). Данный вывод косвенно подтверждается значительным затуханием интенсивности кольца (400) в случае электронной микроскопии (рис. 1г). Так как сфера Эвальда пересекает ось текстуры под углом  $90^\circ$ , то пересечение узлов решетки

(400) и (040), расположенных под углом  $\sim \pm 25^\circ$  и  $\pm 72^\circ$ , не должно происходить.

В случае роста пленки при  $300^\circ\text{C}$  (рис. 3б), отклонение узлов решетки (400) и (040) относительно их теоретического положения связывается с присутствием доли зерен, у которых ось решетки [100], а не [311], также направлена вдоль нормали к поверхности. Так, в случае (100) ориентации этих зерен, узлы решетки (400) и (040) должны располагаться под углом  $\angle\varphi = 0^\circ$  и  $\pm 90^\circ$ . Можно предположить, что суперпозиция дуг (400), расположенных при  $\angle\varphi = 0^\circ$  для (100)-ориентации и  $\angle\varphi = 25^\circ$  для (311)-ориентации зерен, приводит к тому, что наблюдаемые на картине дифракции дуги в результате располагаются в положении  $\angle\varphi = 16^\circ$ .

При температуре  $200^\circ\text{C}$  (рис. 3б) (400)-дуга проявляется в виде слабого и широкого пика при  $\angle\varphi = 0^\circ$ . Такое положение пика может быть связано с тем, что доля зерен, имеющих преимущественную (100)-ориентацию, становится больше, чем при температуре  $300^\circ\text{C}$ . Рост пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  только с (100)-текстурой мы наблюдали ранее [26] в случае окисления предварительно осажденной пленки Fe. Появление (100)-текстуры у пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  объясняли окислением зерен Fe с (110) ориентацией. В этой работе присутствие (100)-ориентации у некоторой части зерен мы связываем с изменением механизма роста  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  при низкой температуре.



**Рис. 4.** Зависимость магнитосопротивления пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенных на поверхности 1.5 нм  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  при температуре подложки: 250 (а), 300 (б) и 400°C (в). Кривая (г) получена для пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенной на поверхности пленки  $\text{SiO}_2$  толщиной 1.2 мкм при 300°C.

### 3.2. Магнитотранспортные свойства пленок $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенных на 1.5 нм $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$ .

На рис. 4 показана зависимость магнитосопротивления ( $MR = (\rho_H - \rho_0)/\rho_0$ ) от величины приложенного магнитного поля ( $H$ ) для пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенных при разных температурах подложки Si с тонким (1.5 нм) и толстым (1.2 мкм) слоем  $\text{SiO}_2$ . Из рисунка видно, что эволюция  $MR$  свидетельствует об уменьшении удельного сопротивления пленок ( $\rho_H$ ) с увеличением магнитного поля  $H$  по сравнению с его значением при  $H = 0$  ( $\rho_0$ ).

Из сравнения кривых а, б и в на рис. 4 видно, что чем выше температура синтеза пленок, тем больше величина  $MR$ . Мы полагаем, что увеличение температуры синтеза ведет не только к росту зерен  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  с преимущественной (311)-ориентацией, но и к качественному изменению морфологии границ раздела между зернами. В работах [13, 28] малые значения  $MR$  для пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  объясняют присутствием аморфной фазы и отсутствием стехиометрии на границе раздела зерен. В работе [29] обнаружено, что в пленке  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенной при комнатной температуре, граница раздела между зернами может представлять собой как протяженные разупорядоченные (аморфные) области, так и области, разупорядоченные на атомарном масштабе. Разупорядоченные области протяженного типа были доминирующими в пленке и отделяли зерна друг от друга на расстояние ~4 нм. Эти области являются причиной спинового разупорядочения и сильного антиферромагнитного взаимодействия на границе зерен, что приводит к уменьшению как намагниченности пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , так и спин-поляризованного тока между зернами. Малые значения  $MR$  для пленки, выращенной при 250°C (кривая а на рис. 4), мы объясняем слабым изменением транс-

порта спин-поляризованных электронов через области с сильным антиферромагнитным взаимодействием. Напротив, увеличение  $MR$  для пленок, выращенных при 300 и 400°C (кривые б и в на рис. 4), может быть связано с уменьшением антиферромагнитного взаимодействия на границах зерен. Вследствие увеличения температуры роста, а также диффузионной подвижности атомов Fe и молекул  $\text{O}_2$  на поверхности роста, образование аморфной фазы между зернами  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  должно уменьшаться. Для этих пленок основным типом дефектов на границе раздела зерен могут быть разупорядоченные на атомарном масштабе области, для которых характерно более низкое антиферромагнитное взаимодействие. Это по всей видимости обуславливает как обнаруженное нами ранее [21] увеличение эффективной намагниченности, так и высокие значения  $MR$  для пленок, выращенных при 300 и 400°C.

Из рис. 4 видно, что величина  $MR$  для пленки, выращенной на толстом слое  $\text{SiO}_2$  (кривая г), возрастает до 0.9% с увеличением приложенного внешнего поля до ~0.4 Тл. Эта величина  $MR$  близка к данным для поликристаллических пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенных на полимерной подложке (kapton substrate) и стекле (рост на 1–1.5% при увеличении поля до 0.4–0.63 Тл) [12, 17, 30]. С другой стороны, из рисунка видно, что значения  $MR$  для этой пленки магнетита в несколько раз превышают значения для такой же пленки, выращенной на ультратонком слое  $\text{SiO}_2$  при 300°C (кривая б). Такое существенное отличие мы связываем с тем, что в случае ультратонкого слоя  $\text{SiO}_2$  электрический ток протекает не только по пленке  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , но и по подложке Si. Так, проведенное нами недавно исследование [31] электропроводности пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , выращенной на 5 нм  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$ , показало, что при КТ присутствует второй канал проводимости по подложке Si(001) за счет термоэлектронной эмиссии в нее электронов.

## 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом реактивного осаждения Fe в атмосфере  $\text{O}_2$  были выращены поликристаллические пленки магнетита на поверхности подложки Si(001), покрытой ультратонким слоем  $\text{SiO}_2$ . Проведен сравнительный анализ экспериментальных данных, полученных методами ПЭМ и ДБЭ. В отличие от ПЭМ, данные метода ДБЭ показали наличие у пленки магнетита текстуры, ось которой нормальна поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$ . Обнаружено, что пленки, выращенные при низкой температуре, содержат зерна с (100) ориентацией. При увеличении температуры роста от 200 до 400°C объемная доля зерен с преимущественной (311)-ориентацией возрастает, а с (100)-ориентацией уменьшается. Угловое отклонение ( $\Delta\phi$ ) направления [311] относительно оси текстуры составляет ~15° и не зависит от температуры синтеза пленок.

Исследование проводимости пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  в зависимости от величины приложенного внешнего магнитного поля показало, что увеличение температуры синтеза приводит к возрастанию магнитосопротивления.

Работа частично поддержана программой РАН “Дальний восток” № 0262-2015-0057.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zhang Z., Satpathy S. Electron states, magnetism, and the Verwey transition in magnetite // *Phys. Rev. B* 1991. V. 44. P. 13319–13331.
2. Zutic I., Fabian J., Das Sarma S. Spintronics: fundamentals and applications // *Rev. of Modern Phys.* 2004. V. 76. P. 323–332.
3. Suzuki T., Sasaki T., Oikawa T., Shirashi M., Suzuki Y., Noguchi K. Room-temperature electron spin transport in a highly doped Si channel // *Appl. Phys. Express* 2011. V. 4. P. 023003–(1-3).
4. Fujii T., Takano M., Katano R., Bando Y., Isozumi Y. Preparation and characterization of (111)-oriented  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films deposited on sapphire // *J. Appl. Phys.* 1989. V. 66. № 7. P. 3168–3172.
5. Ramos A.V., Moussy J.-B., Guittet M.-J., Bataille A.M., Gautier-Soyer M., Viret M., Gatel C., Bayle-Guillemaud P., Snoeck E. Magnetotransport properties of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  epitaxial thin films: thickness effects driven by antiphase boundaries // *J. Appl. Phys.* 2006. V. 100. P. 103902–(1-8).
6. Lu Y.X., Claydon J.S., Xu Y.B., Thompson S.M., Wilson K., van der Laan G. Epitaxial growth and magnetic properties of half-metallic  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  on GaAs(100) // *Phys. Rev. B* 2004. V. 70. P. 233304–233307.
7. Kado T. Structural and magnetic properties of magnetite-containing epitaxial iron oxide films grown on MgO(001) substrates // *J. Appl. Phys.* 2008. V. 103. P. 043902–(1-4).
8. Tiwari S., Prakash R., Choudhary R.J., Phase D.M. Oriented growth of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  thin film on crystalline and amorphous substrates by pulsed laser deposition // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2007. V. 40. P. 4943–4947.
9. Kennedy R.J., Stamp P.A.  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films grown by laser ablation on Si(100) and GaAs(100) substrates with and without MgO buffer layers // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1999. V. 32. P. 16–21.
10. Parames M.L., Mariano J., Viskadourakis Z., Popovici N., Rogalski M.S., Giapintzakis J., Conde O. PLD of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films: influence of background gas on surface morphology and magnetic properties // *Appl. Surf. Sci.* 2006. V. 252. P. 4610–4614.
11. Kim Y.K., Oliveria M. Magnetic properties of reactively sputtered  $\text{Fe}_{1-x}\text{O}$  and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  thin films // *J. Appl. Phys.* 1994 V. 75. № 1. P. 431–437.
12. Mi W.B., Liu H., Li Z.Q., Wu P., Jiang E.Y., Bai H.L. Evolution of structure, magnetic and transport properties of sputtered films from Fe to  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2006. V. 39. P. 5109–5115.
13. Park C., Peng Y., Zhu J.-G., Laughlin D.E., White R.M. Magnetoresistance of polycrystalline  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films prepared by reactive sputtering at room temperature // *J. Appl. Phys.* 2005. V. 97. P. 10C303–(1-3).
14. Tang J., Wang K.-Y., Zhou W. Magnetic properties of nanocrystalline  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films // *J. Appl. Phys.* 2001. V. 89. № 11. P. 7690–7692.
15. Tiwari S., Choudhary R.J., Prakash R., Phase D.M. Growth and properties of pulsed laser deposited thin films of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  on Si substrates of different orientation // *J. Phys.: Condens. Matter* 2007. V. 19. P. 176002–(1-7).
16. Boothman C., Sanchez A.M., van Dijken S. Structural, magnetic, and transport properties of  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Si}(111)$  and  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Si}(001)$  // *J. Appl. Phys.* 2007. V. 101. P. 123903–(1-7).
17. Zhang G., Fan C., Pan L., Wang F., Wu P., Qiu H., Gu Y., Zhang Y. Magnetic and transport properties of magnetite thin films // *J. Magn. Magn. Mater.* 2005. V. 293. P. 737–745.
18. Jain S., Adeyeye A.O., Boothroyd C.B. Electronic properties of half-metallic  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films // *J. Appl. Phys.* 2005. V. 97. P. 093713–(1-6).
19. Huang X., Ding J. The structure, magnetic and transport properties of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  thin films on different substrates by pulsed laser deposition, *J. Korean Phys. Soc.* 2013. V. 62. P. 2228–2232.
20. Балашев В.В., Викулов В.А., Писаренко Т.А., Коробцов В.В. Влияние давления кислорода на текстуру пленки магнетита, выращенного методом реактивного осаждения на поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  // ФТТ. 2015. V. 57. № 12. С. 2458–2462.
21. Викулов В.А., Балашев В.В., Писаренко Т.А., Димитриев А.А., Коробцов В.В. Влияние температуры синтеза на структурные и магнитные свойства пленок  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  на поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  // Письма в ЖТФ. 2012. V. 38. № 7. С. 73–80.
22. Ishizaka A., Shiraki Y. Low temperature surface cleaning of silicon and its application to silicon MBE // *J. Electrochem. Soc.* 1986. V. 133. № 4. P. 666–671.
23. Kobayashi H., Asuha, Maida O., Takahashi M., Iwasa H. Nitric acid oxidation of Si to form ultrathin silicon dioxide layers with a low leakage current density // *J. Appl. Phys.* 2003. V. 94. № 11. P. 7328–7335.
24. Petrov I., Barna P.B., Hultman L., Greene J.E. Microstructural evolution during film growth // *J. Vac. Sci. Technol. A* 2003. V. 21. № 5. P. S117–S128.
25. Heidenreich R.D. Fundamentals of transmission electron microscopy. New York: Interscience Publishers, 1964. 414 p. (Хейденрайх Р. “Основы просвечивающей электронной микроскопии”. М.: Мир, 1966. 472 с.)
26. Балашев В.В., Коробцов В.В., Писаренко Т.А., Чеботкевич Л.А. Особенности формирования пленки  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  на поверхности Si(111), покрытой тонким слоем  $\text{SiO}_2$  // Журн. техн. физики 2011. V. 81. № 10. С. 122–128.
27. Drotar J.T., Lu T.-M., Wang G.-C. Real-time observation of initial stages of copper film growth on silicon oxide using reflection high-energy electron diffraction // *J. Appl. Phys.* 2004. V. 96. P. 7071–7079.
28. Zies M., Höhne R., Semmelhack H.C., Reckentin H., Hong N.H., Esquinazi P. Mechanism of grain-boundary magnetoresistance in  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films // *Eur. Phys. J. B* 2002. V. 28. P. 415–422.
29. Liu H., Jiang E.Y., Bai H.L. Structures and transport properties of polycrystalline  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films // *J. Phys.: Condens. Matter* 2003. V. 15. P. 8003–8009.
30. Liu H., Jiang E.Y., Bai H.L., Zheng R.K., Zhang X.X. Thickness dependence of magnetic and magnetotransport properties of polycrystalline  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  films prepared by reactive sputtering at room temperature // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2003. V. 36. P. 2950–2953.
31. Vikulov V.A., Dimitriev A.A., Balashev V.V., Pisarenko T.A., Korobitsov V.V. Low-temperature conducting channel switching in hybrid  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/n\text{-Si}$  structures // *Mat. Sci. Eng. B* 2016. V. 211. P. 33–36.