

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение
высшего образования
"Воронежский государственный технический университет"

На правах рукописи



ФОШИН ВАДИМ АНАТОЛЬЕВИЧ

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТОРЕЗИСТИВНЫЕ ЯВЛЕНИЯ
В ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ ГЕТЕРОГЕННЫХ СИСТЕМАХ
Co/CoO, (CoFeB-SiO₂)/ZnO, ZnO/C

Специальность: 1.3.8. Физика конденсированного состояния

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук,
профессор Калинин Юрий Егорович

Воронеж – 2025

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	4
ГЛАВА 1 Литературный обзор	11
1.1 Нанокompозиты и многослойные структуры	11
1.2 Электроперенос в нанокompозитах и многослойных структурах	17
1.3 Магнитосопротивление в нанокompозитах и многослойных структурах	25
ГЛАВА 2 Получение образцов и методики исследования	38
2.1 Получение тонкопленочных гетерогенных образцов	38
2.2 Исследование структуры и фазового состава полученных образцов	40
2.2.1 Рентгеноструктурный фазовый анализ	40
2.2.2 Просвечивающая электронная микроскопия	41
2.3 Измерение электрического сопротивления и термоэдс	41
2.4 Измерение магнитосопротивления и магнитных свойств	43
2.5 Измерение комплексной магнитной проницаемости на частоте 50 МГц	47
ГЛАВА 3 Структура гетерогенных систем	50
3.1 Структура нанокompозитов $\text{Co}_n\text{CoO}_{100-n}$	50
3.2 Структура многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$	52
3.3 Структура многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$	55
3.4 Структура многослойных гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$	57
ГЛАВА 4 Электрические явления в гетерогенных системах	59
4.1 Порог протекания	59
4.2 Механизмы проводимости	68
4.2.1 Прыжковая проводимость по Эфросу–Шкловскому (закон «1/2»)	70
4.2.2 Прыжковая проводимость по 2D Мотту (закон «1/3»)	73
4.2.3 Прыжковая проводимость по Мотту (закон «1/4»)	75
4.2.4 Прыжковая проводимость по ближайшим соседям	84
4.2.5 Слабая локализация	87
ГЛАВА 5 Магниторезистивные явления в гетерогенных системах	90
5.1 Спин-зависимое туннелирование в гетероструктурах Co-CoO	90

5.2 Анизотропное и лоренцево магнитосопротивление в многослойных гетероструктурах (Co/CoO) ₆₀	105
5.3 Влияние обменного взаимодействия в многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ на магнитосопротивление	108
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	112
СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ	115
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	116

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы исследования

В текущем столетии стремительно развиваются исследования физических явлений в наноструктурированных материалах, яркими представителями которых являются твердые гетерогенные тела с неоднородностями структуры нанометрового масштаба. Устройства электронной техники, изготавливаемые из наноматериалов должны обладать рядом преимуществ: малые габариты, управляющие напряжения и времена срабатывания. Для таких систем характерно проявление нелинейных свойств в чрезвычайно малых внешних полях, изменение температур фазовых превращений, проявление новых механизмов транспорта электрических зарядов (электропроводности, термоэдс, магнитосопротивления, магнитной термоэдс) и др.

Существует два подхода к изготовлению низкоразмерных структур конденсированной твердотельной среды, размеры которых не превышают нескольких нанометров. Во-первых, можно путем улучшения технологических приемов добиваться сверхвысокого разрешения при обработке поверхности, т.е. все более уменьшать и уменьшать размеры объектов, из которых формируются микроскопические структуры. В основном вся технология микроэлектроники 20-го века развивалась по этому пути. Или измельчать макроскопические объекты до наноразмерные частиц, из которых по керамической технологии создавать гетерогенные наноструктурированные материалы.

Во-вторых, можно использовать физические закономерности роста наноструктур из отдельных атомов, когда нужные структуры «вырастают» сами (эффект самоорганизации). Наука только подошла к разработке такого, несомненно, более перспективного, подхода и исследованию физических свойств подобных наноструктур, к числу которых относятся нанокompозиты и многослойные наноструктуры. На них уже удалось получить ряд замечательных в практическом отношении результатов: прежде всего, это гигантский магниторезистивный эффект (заметное влияние внешнего магнитного поля на величину электрического сопротив-

ления). На основе данного эффекта ряд фирм уже разрабатывает магниторезистивные запоминающие устройства, проектирует спиновые процессоры, матричные сенсорные системы и другие элементы электронной техники.

Актуальность темы исследования заключается в том, что установленные закономерности создают возможности для получения принципиально новых параметров и расширения диапазона рабочих характеристик уже открытых, в том числе нелинейных свойств материалов за счет использования регулируемого изменения их микро- и наноструктуры в виде изменения химического состава, размера и топологии расположения атомов или молекулярных кластеров на расстоянии в несколько нанометров. Физической основой таких явлений является проявление квантово-размерных закономерностей и преобладающее влияние поверхности на свойства наноструктурированных материалов.

Цель работы: установление основных закономерностей влияния морфологии, толщины слоев и других факторов на электрические и магниторезистивные явления в тонкопленочных гетероструктурах Co/CoO , $(\text{CoFeB-SiO}_2)/\text{ZnO}$, ZnO/C .

Для реализации поставленной цели были сформулированы следующие **основные задачи диссертации:**

1. Синтезировать лабораторные образцы новых тонкопленочных магнитных нанокompозитов и многослойных гетероструктур различного состава, толщины, морфологии и провести их аттестацию:

1.1. Нанокompозиты $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_n(\text{SiO}_2)_{100-n}$, $\text{Co}_n\text{CoO}_{100-n}$;

1.2. Многослойные гетероструктуры $(\text{CoFeB-SiO}_2)/\text{ZnO}$, Co/CoO , ZnO/C ;

2. Выявить квантовые механизмы электрической проводимости в синтезированных магнитных нанокompозитах и многослойных гетероструктурах различного состава и морфологии в условиях слабых электрических полей;

3. Установить особенности концентрационных и температурных зависимостей магнитосопротивления в окрестностях перколяционного перехода;

4. Сопоставить результаты экспериментальных исследований электрических и магниторезистивных свойств с существующими теоретическими моделями.

Объектом исследования являются тонкие пленки Co/CoO , $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_n(\text{SiO}_2)_{100-n}$, $(\text{CoFeB-SiO}_2)/\text{ZnO}$, ZnO/C .

Научная новизна работы:

1. Методом ионно-лучевого распыления составной мишени в атмосфере Ar и атмосфере $(\text{Ar} + \text{O}_2)$ были синтезированы наноккомпозиты $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$. На основании анализа концентрационных зависимостей удельного электрического сопротивления и термоэдс установлено, что полученные системы являются перколяционными. Показано, что введение в распылительную камеру кислорода смещает положение порога протекания в сторону меньших концентраций металлической фазы, что связывается с особенностями морфологии пленок, когда малые металлические наночастицы Co расположены на границах крупных частиц CoO, а также уменьшением размера включений металлической фазы.

2. Для составов наноккомпозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ вблизи порога перколяции на диэлектрической стороне наблюдается отрицательное туннельное МС с гистерезисом, который коррелирует с магнитным гистерезисом на петлях намагниченности. Природа магнитного гистерезиса ансамбля наночастиц Co при столь малом содержании кобальта связывается как с морфологией образцов, так и с возможным усилением магнитной анизотропии вблизи интерфейса Co/CoO из-за эффекта магнитной близости.

3. Методом ионно-лучевого распыления двух мишеней (составной $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ с навесками SiO_2 и керамической ZnO) синтезированы многослойные гетероструктуры $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, (где 50 – число бислоев в пленке). Комплексное исследование структурных, электрических, магниторезистивных свойств многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ показало зависимость этих свойств от толщины полупроводниковых прослоек ZnO.

4. Показано, что температурная зависимость удельного электрического сопротивления наноккомпозитов $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$, полученных на вращающуюся подложку, описывается законом прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка Эфроса–Шкловского « $1/2$ ». Для многослойных гетероструктур

$\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ температурная зависимость удельного электрического сопротивления в диапазоне температур 80 – 280 К подчиняется закону Мотта « $1/4$ », характерному для прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми. Установлено, что плотность электронных состояний на уровне Ферми нелинейно растет с увеличением толщины полупроводниковых прослоек ZnO.

Практическая значимость работы:

1. Практическая значимость данной работы заключается в том, что полученные в работе режимы получения гетерогенных наноконкомпозитов и многослойных наноструктур могут быть использованы при использовании результатов работы на промышленных предприятиях.

2. Предложена методика повышения магниторезистивных свойств наноконпозиционных материалов ферромагнетик–диэлектрик путем введения в него полупроводниковой прослойки оксида цинка и отработаны режимы синтеза для структуры $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$.

Научные положения, выносимые на защиту:

1. Ионно-лучевое распыление составной мишени Co+CoO позволяет синтезировать наноконкомпозиты $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, представляющие собой перколяционные системы с порогом протекания, положение которого смещается в сторону меньших концентраций металлической фазы кобальта при добавлении кислорода в распылительную камеру.

2. Магнитосопротивление многослойных гетероструктур (Co/CoO)₆₀ до порога протекания определяется механизмом спин-зависимого туннелирования между гранулами и кластерами металлического кобальта, а за порогом конкурирующими вкладками анизотропного магнитосопротивления перколяционной сеткой ферромагнитного кобальта и лоренцева магнитосопротивления.

3. При введение полупроводниковых прослоек ZnO толщиной порядка 2 нм в наноконкомпозит $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ приводит к смене температурной зависимости в диапазоне температур 80 – 280 К от закона « $1/2$ » (Эфроса–Шкловского) для

нанокompозита к закону « $1/4$ » (Мотта) для многослойных гетероструктур, характерному для прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми.

4. В многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ обнаружено усиление магнитосопротивления при толщине полупроводниковых прослоек около 2 нм.

5. При толщине полупроводниковых прослоек около 4 нм в многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ наблюдается высокочастотная магнитная проницаемость и снижение магнитосопротивления до нулевого значения.

Достоверность

Основные результаты и выводы диссертации были сделаны на основе анализа экспериментальных данных, полученных на достаточно большом количестве исследованных образцов, что подтверждает надежность полученных результатов. Достоверность полученных экспериментальных данных подтверждается их воспроизводимостью и использованием надежных и проверенных методик. Анализ экспериментальных данных проводился на основе большого количества литературных данных с использованием современных моделей и теоретических подходов. Всё перечисленное подтверждает достоверность полученных результатов и выводов диссертации.

Апробация работы

Результаты диссертации представлялись на следующих Международных и Российских конференциях:

1. 65 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов ВГТУ (Воронеж, апрель 2025 г.).
2. Новое в магнетизме и магнитных материалах (НМММ – 2024) (Москва, июль 2024 г.).
3. 64 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов ВГТУ (Воронеж, апрель 2024 г.).

4. 63 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов ВГТУ (Воронеж, апрель 2023 г.).

5. X Международная научная конференция «АКТУАЛЬНЫЕ ПРОБЛЕМЫ ФИЗИКИ ТВЕРДОГО ТЕЛА» (Минск, май 2023 г.).

6. Самаркандский международный симпозиум по магнетизму (Самарканд, июль 2023 г.).

7. 62 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов (Воронеж, апрель 2022 г.).

8. 60 Отчетная научно-техническая конференции профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов (Воронеж, апрель 2020 г.).

9. VII Международная конференция молодых ученых по физике, технологиям, инновациям, ФТИ 2020 (Екатеринбург, май 2020 г.).

Личный вклад автора

Автор принимал участие в получении и аттестации исследуемых образцов, организации и проведении экспериментов, обработке и анализе полученных результатов. Экспериментальные данные по исследованию структуры, электрических, магнитных, магниторезистивных свойств тонкопленочных гетерогенных систем, представленных в диссертации, получены автором лично.

Связь работы с научными программами и проектами

В основу диссертации положены результаты исследований по следующим научно-исследовательским программам и проектам:

– проект «Нелинейные явления в функциональных и конструкционных гетероструктурах на основе оксидных систем» в рамках базовой части государственного задания (проект № FZGM–2020–0007, 2020 – 2022 гг.).

– проект «Твердотельные гетерогенные среды конструкционного и функционального назначения» в рамках базовой части государственного задания (проект № FZGM–2023–0006, 2023 – 2025 гг.).

Публикации

По теме диссертации опубликовано 21 научная работа, 3 работы в изданиях, рекомендованных ВАК РФ и 5 работ, индексируемых в международных базах

Scopus (WoS). Обсуждение полученных результатов и подготовка работ к печати проводились при участии доктора физико-математических наук, профессора Калинина Юрия Егоровича, доктора физико-математических наук, профессора Ситникова Александра Викторовича, кандидата физико-математических наук, доцента Макагонова Владимира Анатольевича.

Объём и структура работы

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений, списка литературы из 171 наименования. Основная часть работы изложена на 135 страницах, содержит 66 рисунков и 3 таблицы.

ГЛАВА 1 ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР

В настоящей главе рассмотрены литературные данные о структуре и основных электрических, магнитных и магниторезистивных свойствах гетерогенных наноструктурированных материалов (нанокомпозитах и многослойных структурах) на основе оксидов металлов и перспективах применения таких материалов на практике.

1.1 Нанокомпозиты и многослойные структуры

Нанокомпозитный материал состоит из нескольких фаз, где по крайней мере одно, два или три измерения находятся в нанометровом диапазоне. Уменьшение размеров материала до нанометрового уровня создает границы раздела фаз, которые очень важны для улучшения свойств такого рода материалов.

Благодаря наномасштабному фазовому процессу достигается синергия между различными компонентами (рисунок 1.1).

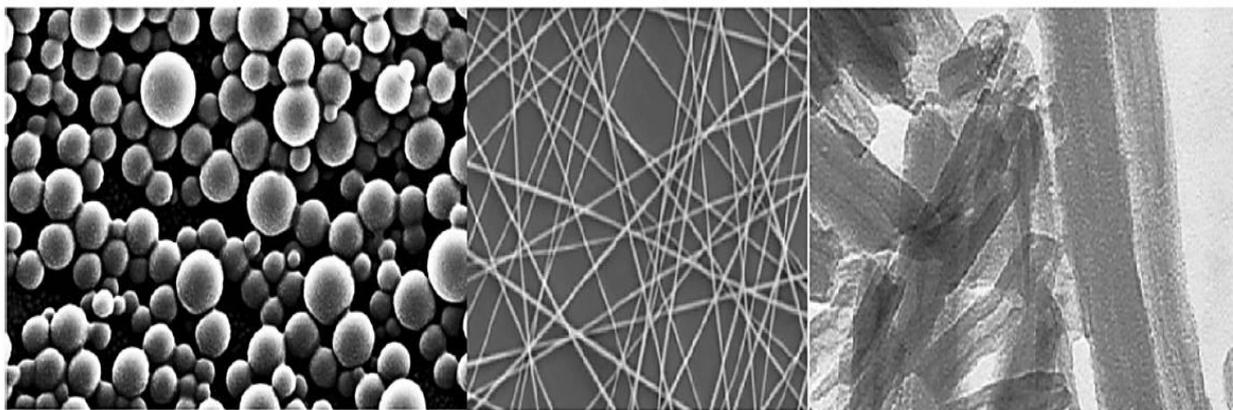


Рисунок 1.1 – Изображение наночастиц [1], нановолокон [2] и наноклинов [3]

Нанокомпозитные материалы стали подходящей альтернативой для преодоления ограничений микрокомпозитов и монолитов. Соотношение площади поверхности и объема материала, используемого при приготовлении нанокомпозитов, напрямую влияет на понимание взаимосвязи структура–свойство.

Свойства материала изменяются, когда размер, составляющих фаз материала, находится ниже определенного уровня, известного как «критический размер» (таблица 1.1).

Наноконпозиты представляют высокоэффективный материал и демонстрируют необычные комбинации свойств, а также уникальные возможности «дизайна». Сами наноконпозиты охватывают очень широкую категорию материалов. Ключевые характеристики композиционных материалов – их высокая механическая прочность, значительная вязкость, стойкость к коррозии, а также электрическая проводимость, теплопроводность, оптическая прозрачность и химическая инертность. Сокращение размеров способно заметно улучшать «внешний облик» поверхности, что в конечном итоге стимулировало появление и развитие наноконпозитов.

Таблица 1.1 – Диапазон изменения критических размеров и свойств в наноконпозитных системах [4]

Характеристики	Изменения, происходящие при критическом размере (нм)
Каталитическая активность	< 5
Смягчение магнитотвердых материалов	< 20
Создание изменений показателя преломления	< 50
Возникновение суперпарамагнетизма и других явлений	< 100
Изменение твердости и пластичности	< 100

Наноконпозитные материалы можно охарактеризовать как многокомпонентные структуры, в состав которых входят одна либо несколько фаз, представленных наномасштабными включениями ($1 \text{ нм} = 10^{-9} \text{ м}$), например, наночастицами, нанотрубками или слоистыми наноформами, интегрированными в металлическую, керамическую либо полимерную матрицу [5]. Считается, что столь гибридная ком-

бинация компонентов способна генерировать необычно высокие эксплуатационные параметры, усиливающиеся за счёт их совместного действия. Для обеспечения выраженного эффекта от введения наноразмерных включений, критически важны качественная адгезия наночастиц к матрице и равномерное распределение этих частиц по всему объёму [6].

В нанокompозитах компоненты матрицы и наполнителя могут быть связаны между собой ковалентными связями, ионными связями, силами Ван-Дер-Ваальса, водородными связями. Общая идея добавления второй наноразмерной фазы состоит в том, чтобы создать синергию между различными компонентами, что позволяет достичь новых свойств, способных удовлетворить или превзойти проектные ожидания.

Характеристики нанокompозитов формируются целой совокупностью факторов: от выбора материала матрицы (которая сама может быть наномасштабной) до степени наполнения, дисперсности, габаритов, конфигурации и ориентации нанофазы, а также особенностей её взаимодействия с матрицей [7]. В литературе подчёркивается, что нанокompозиты представляют собой материалы XXI века благодаря уникальной конструкции и набору свойств, не достижимых в традиционных композитных системах [8].

Гранулированные ферромагнитно-диэлектрические нанокompозиты – это материалы, в которых металлические нанозерна (2 – 10 нм) хаотически распределены в диэлектрической матрице. Уникальная структура и гибкие технологические методы позволяют контролировать размер и концентрацию зерен, что важно, как для фундаментальных исследований, так и для практических применений.

Первые такие нанокompозитные плёнки (cermets) появились в 1970-х годах в виде высокоомных тонкоплёночных резисторов; тогда же были сформированы основные теоретические представления об их электрических и магнитных свойствах. В 1990-е годы интерес к ним возрос вновь, благодаря спросу на эффективные магнитные материалы для записывающих устройств.

На рисунке 1.2 представлены изображения поперечного сечения тонкопленочного образца общей толщиной 30 нм, полученного методом совместного испарения Co и SiO при $x_{Co} = 83,33\%$ [9].

Образец состоит из наногранул Co, между которыми образованы каналы с SiO. Согласно [9], причиной сегрегации SiO на поверхности гранул Co является снижение энергии системы, поскольку поверхностная энергия SiO значительно ниже, чем Co.

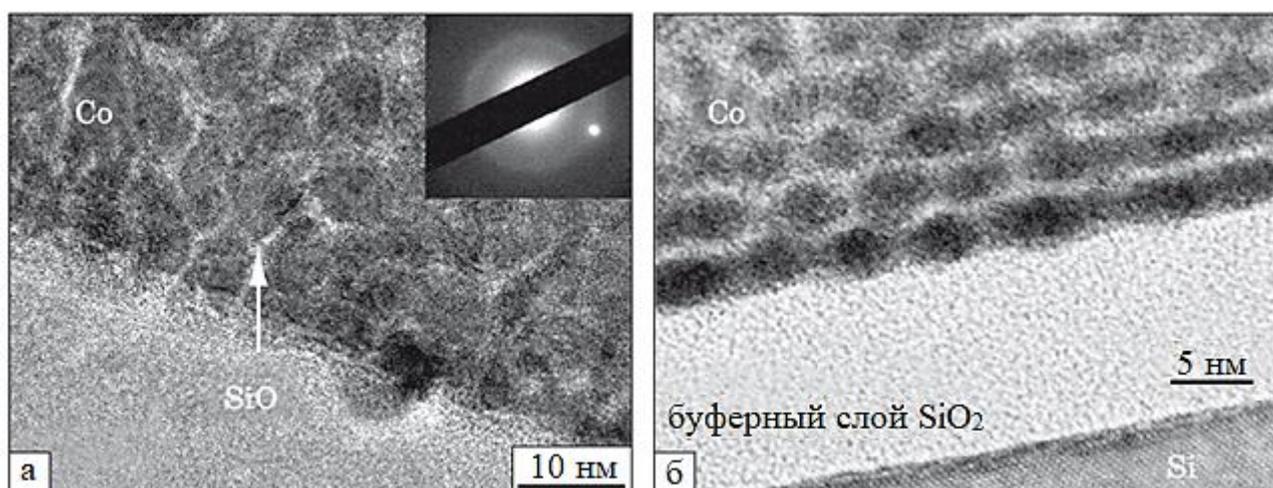


Рисунок 1.2 – Изображения поперечного сечения образца тонкой пленки общей толщиной 30 нм, приготовленного методом совместного испарения Co и SiO при $x_{Co} = 83,33\%$ (а) [9], и многослойной тонкопленочной структуры $[Co(0,7)/SiO_2(3)]_{10}/SiO_2/Si$ (б) после конденсации [10]

В работе [10] предложен способ формирования композиционных материалов путем конденсации многослойной структуры $[Co(0,7)/SiO_2(3)]_{10}/SiO_2(10)/Si$ (толщина в скобках указана в нм) со сверхтонкими слоями. Нанесение дополнительного буферного слоя SiO_2 толщиной 10 нм приводит к трехмерному росту гранул Co в виде сферических кластеров.

Эксперименты [11] показали, что при объемной доле металла ниже порога протекания (ПП) гранулы находятся в однодоменном состоянии, а наноккомпозит при комнатной температуре проявляет суперпарамагнитное поведение. При превышении ПП металл образует фрактальную сеть, и материал приобретает мягкие маг-

нитные свойства на высоких и сверхвысоких частотах. Кроме того, ферромагнитные наноконпозиты демонстрируют гигантское магнитосопротивление до 8 % при комнатной температуре [12], аномальный эффект Холла [13], заметные магниторефрактивные эффекты [14–17].

Многослойные системы «ферромагнитный металл – полупроводник» вызывают интерес из-за возможности осцилляции магнитного взаимодействия при изменении толщины полупроводниковой прослойки [18–23].

В наномногослойных структурах (толщина слоёв всего несколько нанометров) важную роль играют процессы на межфазных границах и внутренняя «архитектоника» [24], однако их высокая чувствительность к дефектам осаждения, качеству подложки и диффузии на границах усложняет интерпретацию данных.

Особый интерес представляют плёнки по схеме «суперпарамагнитный композит – полупроводниковая прослойка» (рисунок 1.3).

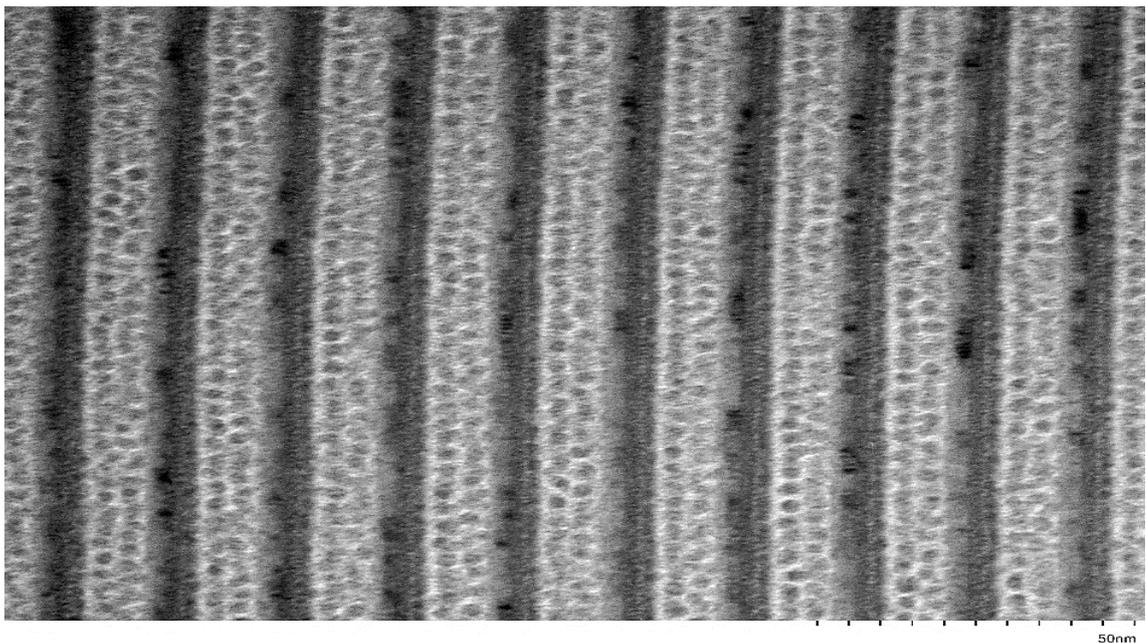


Рисунок 1.3 – Микроизображение поперечного сечения многослойной гетероструктуры $\{[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]/[\text{SnO}_x]\}_{50}$

Если толщина такого композиционного слоя составляет несколько нанометров, а концентрация ферромагнитных гранул не достигает ПП, введение полупро-

водникового промежуточного слоя (рисунок 1.4) может настолько усиливать взаимодействие между частицами, что вся система переходит в магнитоупорядоченное состояние даже при комнатной температуре [25–30].

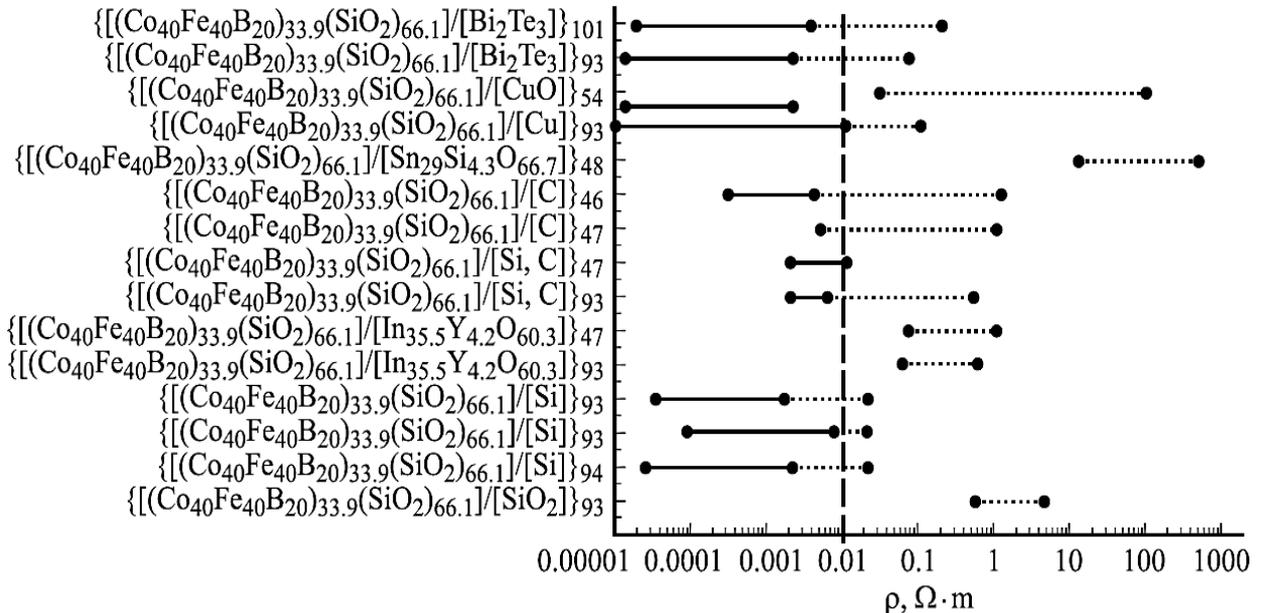


Рисунок 1.4 – Магнитные состояния различных многослойных структур в зависимости от их ρ , штриховая линия показывает величину ρ чистого композита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{33,9}(\text{SiO}_2)_{66,1}$, точечные линии – суперпарамагнитное состояние, сплошные линии – магнитоупорядоченное состояние [25]

Существуют две основные модели, объясняющие этот эффект. Первая связывает рост магнитного взаимодействия с повышением температуры бифуркации [26]. Вторая предполагает появление сильного обменного взаимодействия между гранулами через проводящую прослойку [31,32]. Для выяснения истинного механизма требуются дополнительные эксперименты с варьированием толщины ферромагнитных и полупроводниковых слоёв.

Теоретический интерес к таким материалам во многом обусловлен тем, что квазидвумерные моногранульные ферромагнитные плёнки (где наночастицы контактируют друг с другом) взаимодействуют с «композитной» прослойкой, где гранулы изолированы и сохраняют суперпарамагнитное состояние. Такая внутренняя организация может обеспечивать уникальные магнитные и магнитооптические свойства [33–35].

1.2 Электроперенос в нанокompозитах и многослойных структурах

Механизмы электрической проводимости нанокompозитов активно обсуждаются в литературе, поскольку во многом определяют их магнитные и магнито-транспортные свойства. Ключевую роль играет соотношение металлической и диэлектрической фаз, формирующее переход от металлического к неметаллическому режиму проводимости [36,37].

В зависимости от концентрации металлической фазы, проводимость материалов в непосредственной близости от перехода металл–диэлектрик может быть описана двумя режимами.

Металлический режим возникает, если доля металла выше ПП. Наночастицы формируют протяжённые проводящие кластеры, связывающие весь объём материала. Хотя рассеяние на межгранульных границах снижает проводимость по сравнению с чистыми металлами и сплавами, на макроуровне такой композит ведёт себя как металл [11].

Неметаллический (диэлектрический) режим реализуется при объёмной доле металла ниже ПП. Металлические наночастицы изолированы диэлектрическими прослойками, что обеспечивает высокое ρ . По мере снижения температуры (4,2 – 300 К) и уменьшения содержания металла оно увеличивается вплоть до нескольких порядков.

С точки зрения фундаментальных исследований и прикладных решений наиболее интересен неметаллический режим проводимости, для описания которого в нанокompозитах разработаны несколько моделей, каждая со своим температурным диапазоном применения. Первой стала модель активированного туннелирования электронов (Шенга–Абелеса и др. [38–40]), согласно которой при объёмной доле металла ниже ПП перенос заряда осуществляется путём прямого туннелирования между металлическими наногранулами через диэлектрический барьер, подобно туннелированию через тонкий изолятор между металлическими плёнками. В этой модели проводимость экспоненциально зависит от параметров барьера, разделяющего наночастицы.

$$\sigma \propto \exp(-2(2\pi/\hbar)(2m\phi)^{1/2}s) \quad (1.1)$$

где \hbar – постоянная Планка;

m – эффективная масса электрона;

ϕ – эффективная высота барьера;

s – ширина барьера, равная кратчайшему расстоянию между границами гранул.

Существенный вклад температуры в процесс туннелирования объясняется тем, что при переходе электрона между наногранулами (размером несколько нанометров) меняется их суммарный заряд. Это вызывает локальное нарушение электронейтральности и формирует энергетический барьер, соответствующий затратам на образование пары заряженных гранул. Хотя перенос носит туннельный характер, требуются электроны с достаточной тепловой энергией, чтобы преодолеть этот «кулоновский барьер» (эффект «кулоновской блокады»). Число таких электронов подчиняется Больцмановской статистике [39].

$$N \sim \exp(-E_C/kT), \quad (1.2)$$

где k – константа Больцмана;

T – температура.

Кулоновская энергия гранулы принимается равной:

$$E_C = \frac{e^2}{\varepsilon} \frac{s}{D^2(1/2+s/D)}, \quad (1.3)$$

где ε – диэлектрическая проницаемость диэлектрика;

D – диаметр гранулы.

В модели Шенга–Абелеса гранулы считаются сферическими, а их минимальный зазор s пропорционален диаметру D , то есть $s/D = \text{const}$ для заданного соотношения металлической и диэлектрической фаз [38].

Учитывая туннелирование электронов между гранулами и необходимость, чтобы электрон обладал энергией $E \geq E_C$ (кулоновский барьер), авторы получили аналитическое выражение для электросопротивления наногранулированного композита.

$$\rho = \rho_0 (\exp(2\sqrt{C/k_B T})), \quad (1.4)$$

где $C = (2\pi/h)(2m\phi)^{\frac{1}{2}} s E_C \quad (1.5)$

C – является энергией активации туннелирования.

Ранние экспериментальные результаты по температурной зависимости для композитов, содержащих простую металлическую фазу (Co-Al-O [12,41,42] и Fe-SiO₂ [42,43]) показали, что такой вид $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/2})$ действительно наблюдается, подтверждая адекватность предложенной модели.

Несмотря на качественную адекватность модели термоактивационного туннелирования, она нередко даёт завышенные (иногда на несколько порядков) величины проводимости по сравнению с экспериментом. Более точные результаты даёт учёт «критических путей» переноса, где активные сопротивления моделируют наногранулы и диэлектрические зазоры, а также среднемасштабные параметры: кулоновская энергия, расстояние между гранулами, размеры наночастиц и их координационное число. Этот усовершенствованный подход сохраняет идею термоактивационного туннелирования, объясняя гиганское магнитосопротивление гранулированных композитов, и даёт результаты, согласующиеся с экспериментами.

Однако и усовершенствованная модель не всегда описывает температурно-зависимое сопротивление в интервале 4,2 – 300 К. В работах [44–47] отмечается либо несоответствие предсказанным кривым, либо «насыщение» сопротивления при низких температурах, что противоречит ожидаемому экспоненциальному росту. Кроме того, остаётся неясным, как конкретный состав металлической и диэлектрической фаз влияет на абсолютные значения сопротивления, хотя это важно для прикладного использования нанокompозитов.

Дополнительные исследования показывают, что при малой доле металлической фазы перенос тока происходит не только за счёт туннелирования, но и по «прыжковому» механизму (*variable-range hopping*). В доперколяционных композициях при низких температурах (примерно 77 – 180 К) именно прыжковая проводимость по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми становится доминирующей.

ющей, что позволяет определять плотность электронных состояний как для конкретных составов нанокompозитов, так и непосредственно для металлических гранул [45,48].

В аморфных нанокompозитах, где перенос заряда ограничен прыжковым механизмом между изолированными металлическими наночастицами, радиус локализации электронной волновой функции α принимается сравнимым со средним размером гранул (2 – 3 нм). При исследованных диаметрах наночастиц (4 – 6 нм) это позволило оценить эффективную плотность электронных состояний на уровне Ферми (рисунок 1.5).

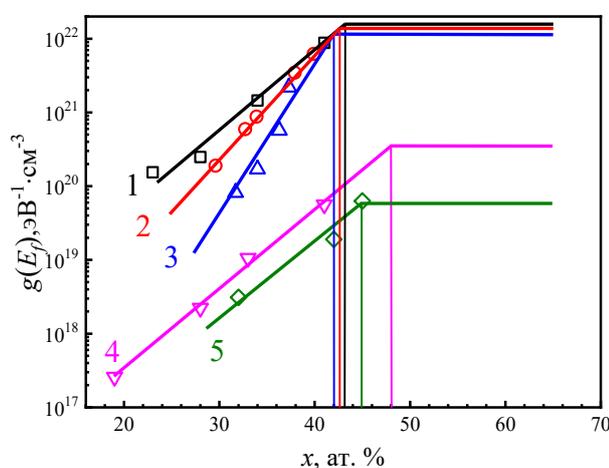


Рисунок 1.5 – Концентрационные зависимости плотности электронных состояний на уровне Ферми нанокompозитов $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ (1), $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x[\text{Pb}_{0,81}\text{Sr}_{0,04}(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})_{0,15}(\text{Zr}_{0,575}\text{Ti}_{0,425})\text{O}_3]_{100-x}$ (2) $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ (3), $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ (4) и $(\text{Co}_{84}\text{Nb}_{14}\text{Ta}_2)_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ (5)

Анализ показал, что для нанокompозитов с одинаковым составом металлических гранул, но разными диэлектрическими матрицами, при концентрациях металла, близких к ПП, значения $g(E_f)$ совпадают. Однако с дальнейшим уменьшением доли металлической фазы в системах с Al_2O_3 плотность состояний убывает быстрее, чем в композитах на базе SiO_2 . Ещё более выразительная тенденция выяв-

лена для образцов с одинаковой матрицей, но различным элементным составом металлических зёрен: рассчитанное $g(E_f)$ возрастает в последовательности $\text{CoNbTa} \rightarrow \text{CoFeV} \rightarrow \text{CoFeZr} \rightarrow \text{Co}$ [49].

Транспортные модели – классическая, полуклассическая, квантово-механическая, связь Рудерман-Киттель-Кацуя-Исида (РККИ) и эффект Кондо – предложены для описания спин-зависимого рассеяния на границе ФМ (ферромагнитный слой)–НМ (немагнитный слой) [50].

Первыми предложили классическую модель эффекта гигантского магнитосопротивления (ГМС) для многослойных ФМ в геометрии СІР (current in plane – ток в плоскости) [51,52].

В этих работах использовали уравнение переноса Больцмана для описания спин-зависимого рассеяния на границе ФМ–НМ, где эффект ГМС определяется отношением толщины ФМ-слоя к длине свободного пробега электронов и асимметрией их рассеяния (\uparrow и \downarrow). Позже авторы учли объемное рассеяние и показали, что эффект ГМС в геометрии СІР обусловлен диффузионным и спин-зависимым рассеянием на границе ФМ–АФМ (антиферромагнитный слой) и ФМ–НМ.

Авторы [53] для геометрии СРР (current perpendicular to plane – ток перпендикулярно плоскости) предложили полуклассическую модель на основе свободных электронов Больцмана. Аналогичную модель предложили в [52], но позволяющую разделить объемные и поверхностные вклады в спин-зависимое рассеяние и магнитную анизотропию. Обе модели игнорируют электронную структуру металлов и не объясняют квантовый эффект при толщине слоя, сопоставимой со средней длиной свободного пробега электронов. В [54] предложили квантовую модель, используя формализм линейного отклика Кубо, которую затем расширили [55], устранив σ -аппроксимацию, но пренебрегая квантовой интерференцией и размерными эффектами. До сих пор не существует единой полной модели, описывающей проводимость в ФМ–НМ многослойных пленках.

Авторы [56] предложили модель, учитывающую локализованные атомные орбитали, возникающие при однозонной прочной связи, для описания электронной структуры металлов, в [57] расширили её, учитывая эффект ГМС как в СІР, так и в

СРР, используя методы однозонной сильной связи и аппроксимации одноячеечного когерентного потенциала для объяснения теории ρ , возникающей из рассеяния электронов в многослойных ФМ. В работе [58] применили функцию Грина для описания σ , обусловленной свободными электронами и квантовыми эффектами, в металлических сплавах и многослойных структурах. В [59] предложили многозонные модели, учитывающие матрицу рассеяния и плотность электронных состояний d -диапазона ФМ, что точнее объясняет колебания МС и перекрытие s - p и 3 - d зон при толщине пленки, сопоставимой с длиной свободного пробега электрона.

В [60], используя зонную и квазиклассическую теории, предложили метод аппроксимации постоянной релаксации, который был расширен [61] и [62] для учета интерфейсов и примесей. Однако влияние дефектов и МС остается трудно количественно оценить. В [63] включили в зонную теорию эффекты дефектов, пустот и искажений решетки с квантовомеханическим эффектом. В работе [62] применили модель первого принципа с квантовомеханическим формализмом для описания вклада МС на границе ФМ–НМ, а [64] добавили спин-орбитальную связь, что позволило объяснить МС, хотя полного описания эффекта в многослойных пленках достичь не удалось, и двухтоковая модель остается основой для количественной оценки.

Механизм ГМС в многослойных системах отличается от механизмов АМС/ОМС (анизотропное магнитосопротивление/обычное магнитосопротивление) в металлах. Эффект АМС обусловлен спин-зависимым объемным рассеянием внутри слоев, тогда как ГМС возникает из-за спин-зависимого рассеяния на границе ФМ–НМ, когда толщина НМ меньше длины спин-диффузии. Вероятность рассеяния зависит от соотношения между ориентацией спинов 4 - s электронов в НМ и магнитным направлением 3 - d электронов в ФМ.

На рисунке 1.6 показано поперечное сечение многослойного материала, состоящего из чередующихся слоев ФМ и НМ.

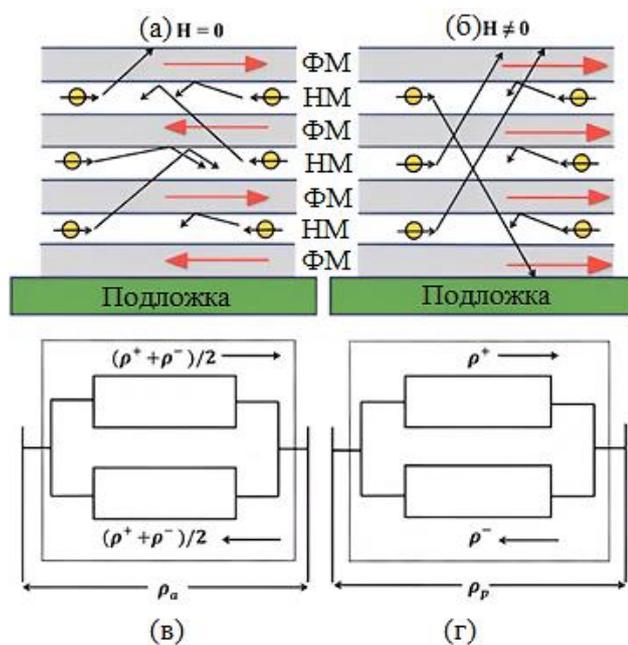


Рисунок 1.6 – Вид в поперечном разрезе многослойной структуры ФМ/НМ и рассеяние 4- s электронов проводимости (маленькие черные стрелки, пересекающие желтые кружки) на локальных 3- d магнитных моментах (большие красные стрелки) (а) $H = 0$; (б) $H \neq 0$. Черные диагональные стрелки представляют пути рассеяния 4- s электронов проводимости. Двухтоковая модель Мотта в применении к многослойным структурам: (в) $H = 0$; и (г) $H \neq 0$. Черные стрелки в (в,г) обозначают каналы тока

Изображены направления магнитных моментов 3- d электронов в ФМ (красные стрелки с большими головами) и 4- s электронов проводимости в НМ (маленькие черные стрелки с кружками). Длинные черные стрелки демонстрируют пути рассеяния s -электронов при $H = 0$, как показано на рисунках 1.6а. Магнитные моменты в соседних ФМ-слоях ориентированы антипараллельно, поэтому 4- s электроны, ориентированные параллельно магнитным спином 3- d электронов, свободно проходят через первый ФМ-слой, но рассеиваются при столкновении со вторым слоем. Это многократное рассеяние приводит к высокому значению ρ в многослойных структурах.

Применение внешнего H -поля значительно снижает рассеяние ρ на границе ФМ–НМ. Это поле помогает преодолеть антиферромагнитное взаимодействие трехмерных спинов, приводя к их параллельному выравниванию по направлению

H . Таким образом, магнитные спины $3-d$ электронов в ФМ ориентируются вдоль H . В такой ситуации $4-s$ электроны проводимости с параллельным спином (\uparrow) проходят через ФМ-слой без рассеяния, а с антипараллельным спином (\downarrow) многократно рассеиваются при переходе между слоями. Это расхождение приводит к значительному снижению ρ многослойных структур, уменьшение которого может достигать 2 порядков.

Рисунок 1.6б иллюстрирует двухтоковую модель Мотта для многослойных структур. В варианте при $H = 0$ магнитные моменты в соседних ФМ-слоях антипараллельны, что приводит к возникновению ρ за счёт различного поведения электронов с \uparrow и \downarrow спинами. В варианте при $H \neq 0$ магнитные спины $3-d$ электронов в ФМ-слоях выровнены параллельно, что демонстрирует изменённое распределение спин-электронов и соответствующее влияние на ρ .

Изменения ρ при приложении поля H выражаются как $\Delta\rho/\rho_p = (\rho_a - \rho_p)/\rho_p$, где ρ_a – сопротивление без H (рисунок 1.6в), а ρ_p – с H (рисунок 1.6г). После упрощения получается формула [65]: $\Delta\rho/\rho_p = (1 - \alpha)^2/(4\alpha)$, где $\alpha = \rho_-/\rho_+$ – параметр асимметрии рассеяния. Таким образом, величина эффекта ГМС определяется разницей между ρ_- и ρ_+ , то есть между электронами со спином вниз (\downarrow) и со спином вверх (\uparrow).

Большинство исследований спин-зависимой проводимости (σ) в многослойных ФМ основано на анализе расположения спинов вдоль поперечного сечения. Однако для полного понимания спин-зависимого рассеяния и механизма проводимости необходимо изучать и доменные структуры, а также распределение спинов на поверхности фильма. Для значительного эффекта ГМС важны: нанометровая толщина ФМ-слоев и НМ-слой, тоньше длины свободного пробега, что не всегда соблюдается для сыпучих материалов.

На рисунке 1.7 представлена схема трехслойных наноструктурированных пленок ФМ/НМ с изображением магнитных доменов и ориентации спинов вдоль поверхности ФМ-слоев: (а) изотропный ($H = 0$) и (б) анизотропный ($H \neq 0$). Необходим новый метод перевода случайно ориентированных спинов в одноосное состояние, который требует дальнейшего анализа.

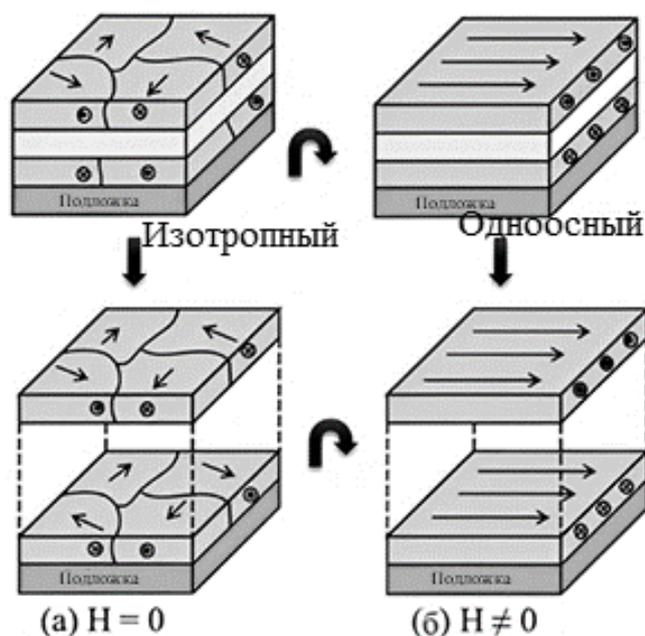


Рисунок 1.7 – Случайно ориентированные многодоменные ферромагнитные многослойные, состоящие из изотропных доменов S_0 (а) и одноосно ориентированные однодоменные многослойные ферромагнитные (б)

Модели проводимости многослойных слоев (рисунок 1.6–1.7) показывают профиль ρ/σ для многослойных структур, служа основой их описания. Эти модели применимы и к спиновым клапанам с несколькими слоями. В спиновом клапане, за исключением того, что магнитный момент одного слоя фиксирован (обычно антиферромагнитным слоем), механизм проводимости схож с многослойными: свободный слой «открывается» при параллельной ориентации спинов и «закрывается» при антипараллельной, что объясняет название спин-клапан.

1.3 Магнитосопротивление в нанокompозитах и многослойных структурах

Магнитное состояние определяет электрическое сопротивление многослойной структуры. Точнее говоря, сопротивление такой пленки велико, когда спины в ферромагнитных слоях антипараллельны, и падает до низкого, когда спины параллельны. Изменение сопротивления в гетероструктуре происходит только за счет

изменения ориентации спина и называется ГМС. Представление спина в ферромагнитных слоях приведено на рисунок 1.8. ГМС связано со спин-зависимым рассеянием, которое запускается спин-поляризацией электронов под действием внешнего магнитного поля [66–68].

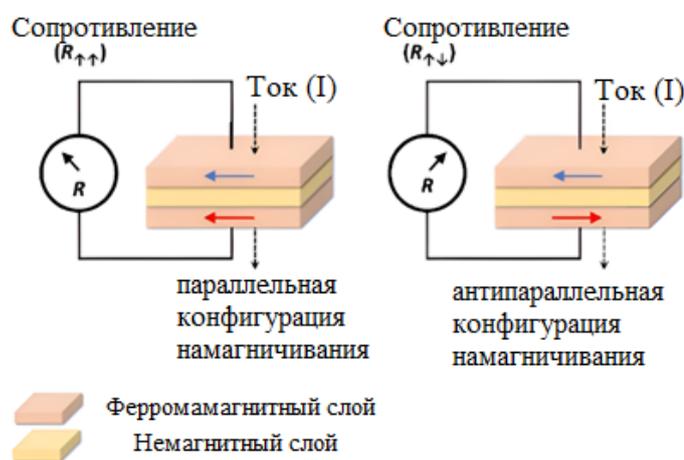


Рисунок 1.8 – Представление спиновой конфигурации ГМС

Величина МС выражается так называемым отношением МС, определяемым как:

$$MC = \rho_{АП} - \rho_{П} / \rho_{АП} \quad (1.6)$$

или

$$MC = \rho_{АП} - \rho_{П} / \rho_{П} \quad (1.7)$$

где $\rho_{АП}$ и $\rho_{П}$ – удельное электрическое сопротивление в антипараллельной и параллельной ориентации намагниченности магнитных слоев.

Поскольку обычно $\rho_{П} < \rho_{АП}$, выражения (1.6) и (1.7) называются пессимистическими и оптимистическими определениями соответственно. В экспериментах обычно используется оптимистическое определение, уравнение (1.7).

Стоит отметить, что ФМ и НМ выращиваются поочередно до общей толщины в несколько нанометров, при этом толщина каждого слоя поддерживается на уровне нескольких атомных слоев на слой. ГМС наблюдается также в металлических многослойных структурах, где толщина каждого слоя не превышает нескольких атомных слоев на слой. Было обнаружено, что толщина каждого слоя НМ имеет решающее значение для определения эффекта ГМС в многослойных структурах,

состоящих из слоев ФМ и НМ в повторяющемся порядке. В частности, сильный эффект ГМС достигается только тогда, когда толщина каждого слоя НМ значительно меньше длины свободного пробега электронов проводимости. Средняя длина, которую проходит электрон до рассеяния, называется средней длиной свободного пробега. Однако в некоторых многослойных пленках, например, очень тонких, электроны не могут пройти максимальную длину свободного пробега; они достигают границы раздела между двумя тонкими слоями, а не рассеиваются другими атомными частицами или ионами. Это приводит к уменьшению свободного пробега электронов в очень тонких слоях материала. Это означает, что электронам проводимости труднее проходить через такие тонкие слоистые пленки, и в результате ρ становится выше.

Хорошо установленный факт, что эффект ГМС в многослойном ФМ обусловлен главным образом, спин-зависимым рассеянием электронов на каждой границе раздела ФМ–НМ и в присутствии приложенного поля H . Это означает, что определенная пороговая плотность электронов проводимости должна быть рассеяна на границе раздела ФМ–НМ, чтобы достичь сильного эффекта ГМС.

Позже сообщили о периодическом повторяющемся (колебательном) эффекте ГМС, когда толщина слоев Cu между слоями Co систематически изменялась [69]. Это показано на рисунке 1.9.

МС носит колебательный характер и меняется в зависимости от толщины слоя меди. Пик кривых МС соответствует антиферромагнитному выравниванию магнитных моментов в соседних слоях Co, обозначенному на диаграмме АФМ (антиферромагнетик).

Однако причина такого периодического поведения МС оставалась неизвестной в течение десятилетий, пока РККИ не предложили свою теорию связи [70–74].

С тех пор были изготовлены и тщательно исследованы многие другие многослойные ФМ, в том числе Co/Ru, Fe/Cu, Co/Cu, Co/Au, Co/Ag, и они показали усиление эффектов ГМС [75–78].

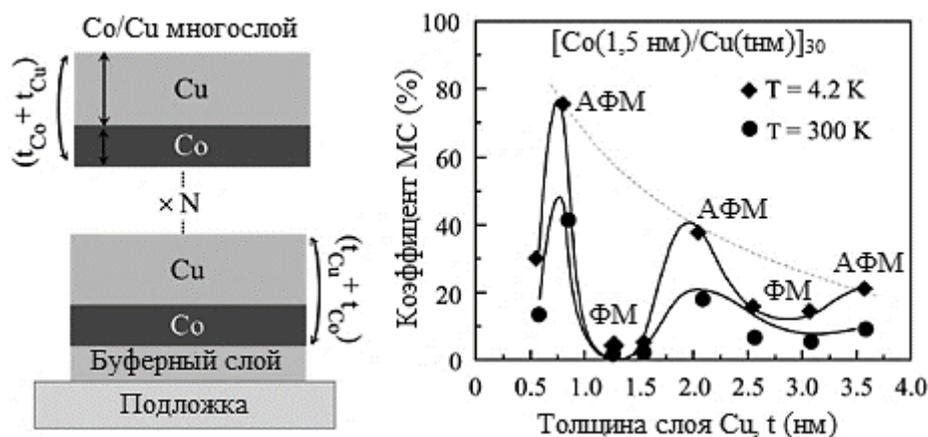


Рисунок 1.9 – Схема многослойной пленки Co/Cu: МС для многослойной структуры Co/Cu при комнатной температуре и 4 К (индекс 30 на вставке указывает количество бислоев)

Спин-зависимое сопротивление в ферромагнитных металлах тесно связано с электронной структурой металла и примесей, введенных в металл. Электронная структура металлов, входящих в состав магнитных многослойных структур, также определяет спин-зависимое сопротивление (или сопротивление) в многослойных структурах. Опишем возможные источники спин-зависимого сопротивления в многослойных структурах с точки зрения электронных состояний.

Шероховатость интерфейса. Как описано, источником спин-зависимого сопротивления в металлах и сплавах является спиновая зависимость рассеивающих потенциалов, вызванная шероховатостью. Шероховатость, вызванная случайным расположением атомов, также существует в многослойных материалах. В методах молекулярно-лучевой эпитаксии и напыления невозможно избежать перемешивания атомов на интерфейсах. Перемешивание магнитных атомов А и немагнитных атомов В на интерфейсе А/В приводит к появлению спин-зависимых случайных потенциалов вблизи интерфейса. Ситуация аналогична той, что наблюдается в ферромагнитных сплавах.

Согласование/несоответствие зон на интерфейсах. Суть происхождения электрического сопротивления заключается в отсутствии трансляционной инвариантности вдоль направления тока, поскольку в этом случае импульс электронов не

обязательно должен сохраняться. Когда интерфейсы чистые, трансляционная инвариантность, параллельная плоскостям слоев, выполняется, и электрического сопротивления нет. Однако даже в этом случае существует электрическое сопротивление, перпендикулярное плоскостям слоев, поскольку для тонких мультислоев трансляционная инвариантность вдоль этого направления отсутствует. В этом случае разница в электронной структуре составляющих металлов мультислоев действует как источник спин-зависимого электрического сопротивления и приводит к возникновению CPP–ГМС. Например, в Co/Cu согласование зон между состояниями спина (+) намного лучше, чем между состояниями спина (–). Следовательно, реализуется $\rho_+ \ll \rho_-$. В мультислоях Fe/Cr реализуется противоположное соотношение $\rho_- \ll \rho_+$. Спиновая зависимость сопротивления такая же, как и зависимость, полученная с помощью спин-зависимых случайных потенциалов.

Таким образом, как случайные потенциалы, так и соответствие/несоответствие электронной структуры вызывают одну и ту же спиновую зависимость сопротивления [59,79–83].

Следует отметить, что эффект ГМС зависит от толщины ФМ t_{FM} и толщины прослойки НМ t_{NM} . В геометрии SIP масштабы критической длины задаются средними свободными пробегами как в ФМ-слое, где они зависят от спина, так и в межслоевом материале (обычно ≈ 20 нм в Cu). SIP–ГМС быстро уменьшается в зависимости от t_{NM} как из-за рассеяния электронов, уменьшающего поток электронов, пересекающих разделительный слой, так и из-за шунтирования тока в этом слое.

В SIP–ГМС ток параллелен плоскости слоистых гетероструктур. Магнитные моменты не выровнены в ферромагнитных слоях при отсутствии магнитного поля. Но применение сильного магнитного поля приводит к выравниванию магнитных моментов. Это приводит к изменению плоскостного электрического сопротивления.

Если моменты совпадают, электроны со спином вверх в одном ферромагнитном слое будут одинаковыми и во втором слое. Это справедливо и для электронов со спином вниз. Но когда моменты не выровнены, электроны со спином вверх в одном слое будут иметь спин вниз, когда они дрейфуют в другой ферромагнитный

слой. В СР–ГМС рассеяние слабо для электронов с параллельными спинами в ФМ-слое и сильно для электронов с противоположными спинами. Поляризация объемного тока (α) ферромагнитного слоя равна $\alpha = \frac{\sigma_+ - \sigma_-}{\sigma_+ + \sigma_-}$, где проводимость электронного спина задается как $\sigma_{\pm} = e^2 g_{\pm} v_{\pm}^2 \tau_{\pm}$. Здесь g_{\pm} – плотность электронов, v_{\pm} – фермиевская скорость электронов и τ_{\pm} – время релаксации импульса [84].

Сопротивление гетероструктуры и ГМС можно понять, используя модель сопротивления, представленную на рисунке 1.10.

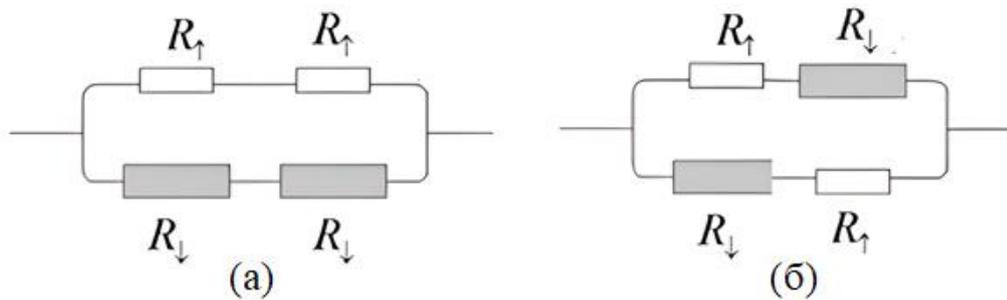


Рисунок 1.10 – Модель сопротивления для СР–ГМС: (а) Параллельная и (б) Антипараллельная конфигурация

Сопротивление гетероструктуры в параллельной и антипараллельной конфигурации соответственно определяется как $R_{\Pi} = \frac{2R_{\uparrow}R_{\downarrow}}{R_{\uparrow}+R_{\downarrow}}$, $R_{АП} = \frac{R_{\uparrow}+R_{\downarrow}}{2}$, Проводимость, соответствующая каждой конфигурации, определяется как $G_{\Pi} = \frac{1}{R_{\Pi}} = \frac{1}{2R_{\uparrow}} + \frac{1}{2R_{\downarrow}}$

$$G_{АП} = \frac{1}{R_{АП}} = \frac{2}{R_{\uparrow}+R_{\downarrow}}.$$

Разработаны различные методы повышения чувствительности традиционных многослойных систем с ГМС. Один из способов – максимизировать количество слоев многоуровневой системы. Хотя такой архитектуры можно достичь с помощью процессов физического/химического осаждения, упомянутых ранее, этот путь значительно увеличивает сложность и снижает эффективность производственного процесса. Гранулированные системы разработаны для замены многослойной конфигурации, что позволяет повысить чувствительность и снизить потенциальные экономические и временные затраты.

Мелкие зерна спрессовываются вместе, образуя зернистую систему в первой геометрии [85]. Другая геометрия строится путем внедрения магнитных частиц в немагнитную матрицу (проводящую или изолирующую) [86,87]. Выдвинутая гипотеза предполагает, что такая геометрия может улучшить величину МС, поскольку каждая граница между зернистыми частицами может стать спин-селекторным соединением [85].

Гранулированные системы страдали от неравномерного распределения и плохих границ зерен на ранних стадиях. Химически/физически подготовленные наночастицы были применены для создания гранулированных систем, поскольку новые нанотехнологии обеспечивают равномерно диспергированные наночастицы.

В гранулированных системах, как и в многослойных системах, используются наночастицы, содержащие Fe и Co. Химически синтезированные наночастицы Fe_3O_4 используются при создании гранулированных систем из-за их доступности, стабильности и большой намагниченности. Гранулированные системы Fe_3O_4 достигли $-1,6\%$ и $-1,2\%$ изменения сопротивления при 5 кЭ для тонкой пленки и прессованного порошка [88].

На основе структур ядро-оболочка Fe_3O_4 были разработаны различные гранулированные МС-системы, включая $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$, $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZnS}$, $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{ZrO}_2$ и $\text{MgO}@\text{Fe}_3\text{O}_4$ [85,89–91].

Эти гранулированные системы достигли большого линейного рабочего диапазона (~ 2 Тл) и относительно больших отрицательных МС-откликов ($-4\% \sim -8\%$). Однако большинству из них требуются низкие температуры для получения удовлетворительных значений МС.

В то же время Co широко применяется при создании гранулированных систем. Исследования проводились на гранулированных системах Co-Cu, Co-Ag, Co-Ni и ZnO/ZnO-Co [92–94]. Кроме того, химически синтезированные наночастицы CoFe_2O_4 демонстрировали большое отрицательное МС ($-18\% \sim -19\%$), полученное в сильном магнитном поле (70 кЭ) [85].

Другая геометрия гранулированных систем основана на внедрении наночастиц в немагнитную матрицу (рисунок 1.11) [95]. Наночастицы Fe были осаждены

на матрицу SiO_2 с помощью ионного пучка, что позволило добиться положительного МС на уровне 40 % в условиях большого магнитного поля (80 кЭ) и комнатной температуры [96].

Между тем, FeCo демонстрирует хорошую совместимость с гранулированной МС-системой, состоящей из магнитных наночастиц и немагнитной матрицы. FeCo обладает высокой намагниченностью насыщения и сильными спин-зависимыми рассеивающими свойствами, которые предпочтительны в МС-материалах [97–99].

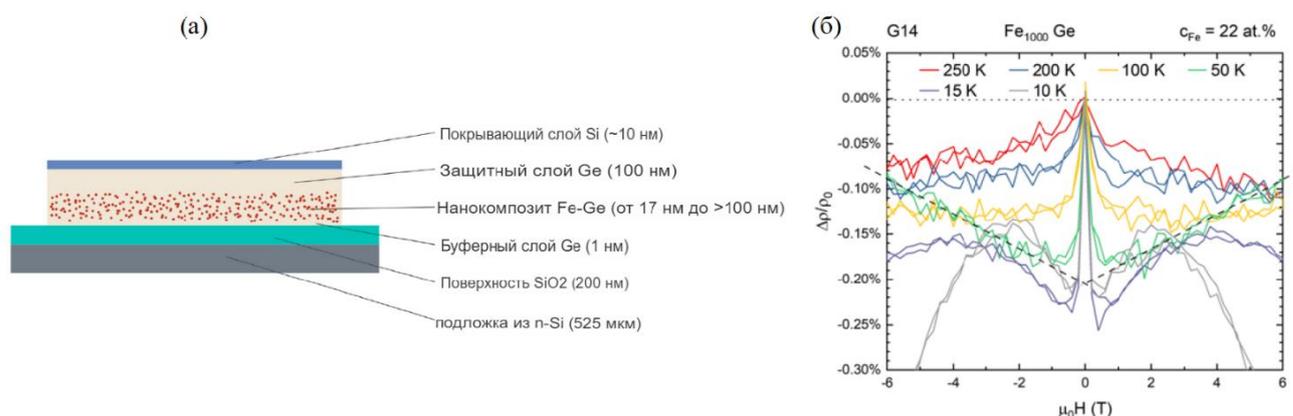


Рисунок 1.11 – Оптическая микрофотография и принципиальная схема гранулированных систем на основе наночастиц Fe в матрице Ge (а), МС Fe-Ge при разных температурах (б) [95]

Гранулы/частицы FeCo были внедрены в Si-N, SiO_2 , Al_2O_3 , Cu и углеродную матрицу методом магнетронного распыления [97,100–103].

В этих исследованиях гранулированные системы FeCo достигли МС до 30 % при комнатной температуре. Однако сильное магнитное поле (50 кЭ) является необходимым условием для гранулированных систем FeCo для достижения большого магнитного сопротивления при температуре окружающей среды. Таким образом, гранулированные системы по-прежнему демонстрируют неадекватное МС в низком магнитном поле (≤ 10 кЭ). В некоторых случаях гранулированным системам могут потребоваться особые условия (например, низкие температуры, сильные магнитные поля и т. д.) для достижения надлежащих характеристик.

Вскоре после открытия ГМС на горизонте исследований появляется туннельное магнитосопротивление (ТМС). Как продемонстрировали авторы [104] и [105] когда слой НМ в многослойной пленке заменяется изолятором, таким как MgO, образующаяся таким образом структура называется магнитными туннельными переходами (МТП), поскольку эти многослойные структуры демонстрируют эффект ТМС. Во многом так же, как и в структурах, вызывающих эффект ГМС, электрическое сопротивление в этих МТП резко меняется с изменением относительного направления намагниченности в ФМ-слое, что, в свою очередь, отвечает за процесс туннелирования электронов проводимости. через изоляционный слой.

Слой изолятора наносится вместо НМ многослойной системы ГМС (рисунок 1.12) [106].

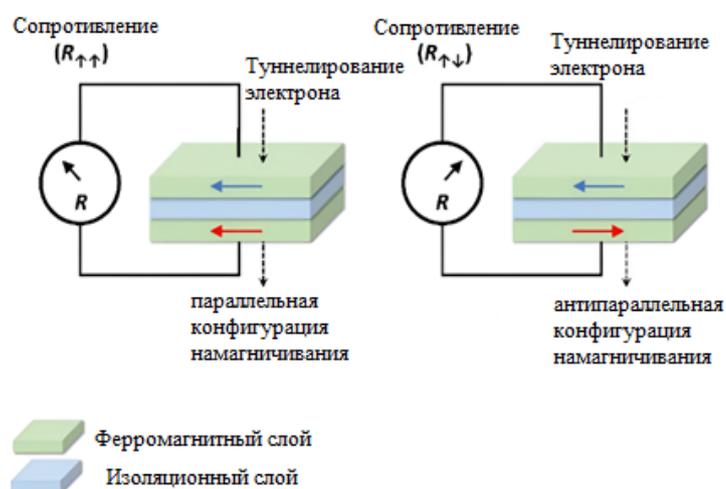


Рисунок 1.12 – Принципиальная схема ТМС

В то время как σ в структурах ГМС в основном возникает из-за рассеяния электронов проводимости на границе раздела ФМ–НМ, в структурах ТМС электроны могут туннелировать с одной стороны изолятора на другую (чтобы занять доступные электронные состояния в слоях ФМ) благодаря явлению квантового туннелирования [107].

Число туннелирующих электронов в этих конфигурациях определяется ориентацией намагниченности спина электрона в соседних ФМ-слоях. Ориентация

намагниченностей ферромагнитных слоев важна (например, эффект туннелирования велик, когда намагниченность спина электрона в соседних ФМ-слоях ориентированы параллельно направлению движения электронов, тогда как, когда они ориентированы антипараллельно, эффект туннелирования мал) в ТМС из-за спин-зависимого туннелирования. Подобно эффекту ГМС, эффект ТМС представляет собой чисто квантово-механический эффект, поскольку магнитное движение электронов и их спиновая ориентация сохраняются до и после процесса туннелирования. При спин-зависимом туннелировании электрон может туннелировать в подзону с тем же направлением спина. Изменение намагниченности может поменять местами две спиновые подзоны (за счет спин-поляризации), что приводит к изменению сопротивления [107]. ТМС достигает относительно больших изменений сопротивления (30 %) даже на ранних стадиях развития, хотя требуются экстремальные условия (например, низкая температура) [106].

Теорию, лежащую в основе ТМС, можно понять следующим образом [108]: проводимость для параллельного выравнивания магнитных моментов равна $G_{\parallel} = G^{\uparrow\uparrow} + G_{\downarrow\downarrow}$ и пропорциональна $N_{\text{Л}}^{\uparrow}N_{\text{П}}^{\uparrow} + N_{\text{Л}}^{\downarrow}N_{\text{П}}^{\downarrow}$. Здесь $N_{\text{Л}}^{\uparrow}(N_{\text{Л}}^{\downarrow})$ и $N_{\text{П}}^{\uparrow}(N_{\text{П}}^{\downarrow})$ – число плотностей состояний носителей со спином вверх (спин вниз) в левой и правой области магнитных материалов. Аналогично, проводимость для антипараллельного выравнивания определяется как $G_{\text{АП}} = G^{\uparrow\downarrow} + G_{\downarrow\uparrow}$. Следовательно, ТМС определяется как выражение 1.7:

$$\text{ТМС} = \frac{G_{\parallel} - G_{\text{АП}}}{G_{\text{АП}}} = \frac{2\Delta N_{\text{Л}}\Delta N_{\text{П}}}{N_{\text{Л}}N_{\text{П}} - \Delta N_{\text{Л}}\Delta N_{\text{П}}} = \frac{2P_{\text{Л}}P_{\text{П}}}{1 - P_{\text{Л}}P_{\text{П}}} \quad (1.8)$$

Al_2O_3 , $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, MgO и NiO являются одними из изолирующих оксидных слоев, которые были включены в ФМ-слои структур ТМС, и при такой модификации сообщалось о самом высоком экспериментальном эффекте ТМС, достигающем 600 %, для модифицированного MgO . конфигурация тонкослойной пленки ФМ–НМ. Теоретически для этой системы было предсказано значение ТМС до 1000 % [109,110].

Заменяв аморфный AlO_x эпитаксиальным MgO , теоретики предсказали, что соотношение ТМС превышает 1000 % из-за когерентного туннелирования на границе раздела Fe/MgO [111].

Довольно большое МС наблюдалось в тонких пленках, в которых магнитные зерна Co внедрены в оксиды, такие как Si-O [12,112]; это наблюдение было сделано почти в то же время, когда было обнаружено большое ТМС в туннельных переходах Fe/Al-O/Fe .

Соотношение МС гранулированного ТМС определяется по формуле (1.9):

$$\text{МС} = \frac{\Gamma^{-1}(0) - \Gamma^{-1}(H)}{\Gamma^{-1}(0)} = \frac{P^2}{1+P^2} \quad (1.9)$$

что составляет всего лишь половину отношения МС к ТМС. Это происходит из-за случайного распределения направления намагниченности зерен, когда внешнее магнитное поле не применяется.

Вышеуказанный результат получается следующим образом. Рассмотрим два ферромагнитных зерна L и R , показанных на рисунке 1.13.

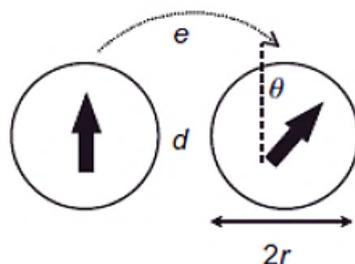


Рисунок 1.13 – Туннелирование электрона между двумя зернами, намагниченности, которых наклонены под углом θ

Намагниченность зерна R наклонена на угол θ относительно намагниченности зерна L . В этом случае вероятность перехода электрона из зерна L в то же спиновое состояние на зерне R определяется как $\cos^2(\theta/2)$, а для перехода в противоположное спиновое состояние на зерне R определяется как $\sin^2(\theta/2)$. Таким образом, вероятность туннелирования электрона между зернами L и R определяется как (1.10) и (1.11):

$$T_{\uparrow\uparrow} = D_L + D_R + \cos^2(\theta/2) + D_L + D_R - \sin^2(\theta/2) \quad (1.10)$$

$$T_{\downarrow\downarrow} = D_L - D_R - \cos^2(\theta/2) + D_L - D_R + \sin^2(\theta/2) \quad (1.11)$$

где $D_{L+(-)}$ и $D_{R+(-)}$ – основные (меньшинственные) спиновые плотности состояний зерен L и R соответственно. Общая вероятность туннелирования определяется как:

$$T = T_{\uparrow\uparrow} + T_{\downarrow\downarrow} P p \propto 1 + P^2 \cos\theta \quad (1.12)$$

где

$$p^2 = \frac{(D_{L+} - D_{L-})(D_{R+} - D_{R-})}{(D_{L+} + D_{L-})(D_{R+} + D_{R-})} \quad (1.13)$$

Предполагается, что спин туннелирующего электрона сохраняется в процессе туннелирования. Туннельная проводимость в отсутствие магнитного поля определяется по формуле (1.14):

$$\Gamma(0) \propto \langle 1 + P^2 \cos\theta \rangle_{av} = 1, \quad (1.14)$$

когда применяется внешнее магнитное поле H, оно

$$\Gamma(H) = 1 + P^2. \quad (1.15)$$

Затем получаем уравнение (1.9). На рисунке 1.14 показаны экспериментальные результаты для гранулированного ТМС [112].

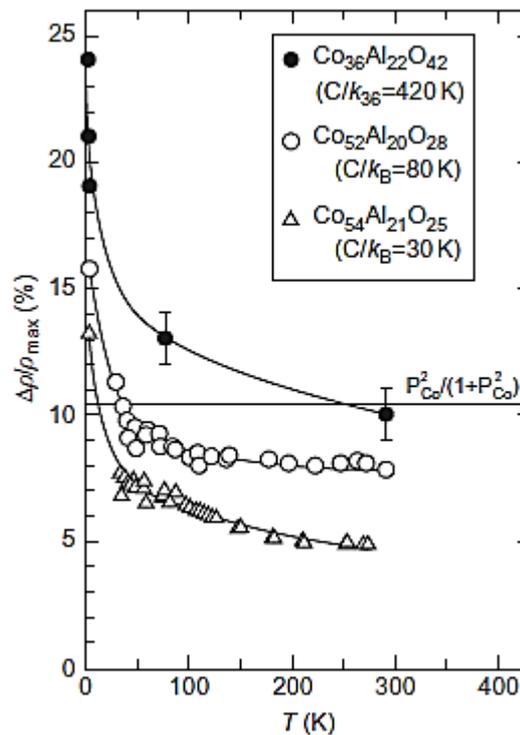


Рисунок 1.14 – Экспериментальные результаты для гранулированного ТМС [112]

Они согласуются с теоретическими результатами при высоких температурах. На рисунке 1.14 отношение MC увеличивается при низких температурах, что можно объяснить с точки зрения кулоновской блокады.

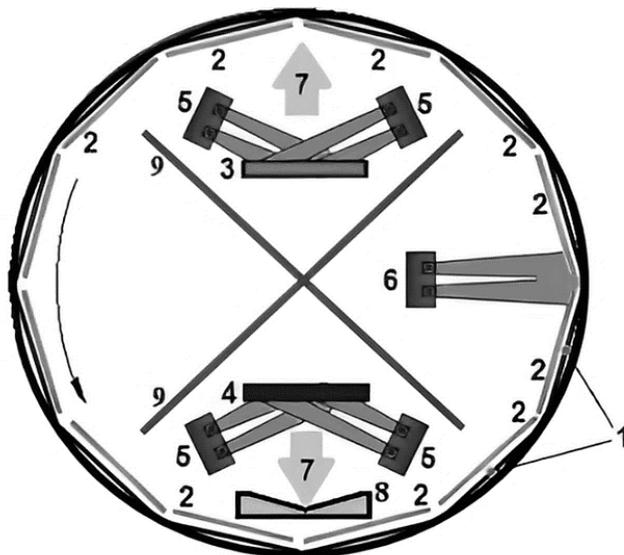
В заключение первой главы отметим, что несмотря на понимание многих экспериментальных результатов по изучению транспортных и магниторезистивных явлений в гетерогенных наносистемах, еще остается много вопросов по управлению наблюдаемых механизмов, путем создания нужной морфологии, толщины слоев, условий нанесения осаждаемых компонентов и других факторов. С учетом вышесказанного была сформулирована следующая цель работы: установление основных закономерностей влияния морфологии, толщины слоев и других факторов на электрические и магниторезистивные явления в тонкопленочных гетероструктурах Co/CoO , $(CoFeB-SiO_2)/ZnO$, ZnO/C .

ГЛАВА 2 ПОЛУЧЕНИЕ ОБРАЗЦОВ И МЕТОДИКИ ИССЛЕДОВАНИЯ

2.1 Получение тонкопленочных гетерогенных образцов

Для синтеза тонкопленочных систем применяли метод ионно-лучевого напыления (ИЛН), являющийся разновидностью ионно-плазменного распыления [28,113,114]. Используемая установка на базе вакуумного поста УВН-2М (рисунок 2.1) включает вакуумную камеру с тремя ионно-лучевыми источниками для распыления мишеней и предварительной обработки подложек, а также компенсатор заряда в виде вольфрамовой проволоки (диаметр 0,2 мм).

Вращающаяся карусель с шестью подложкодержателями и V-образный экран позволяют получать образцы с контролируемой толщиной в рамках одного технологического цикла, что обеспечивает высокую точность и оптимизированные физико-химические свойства пленок.

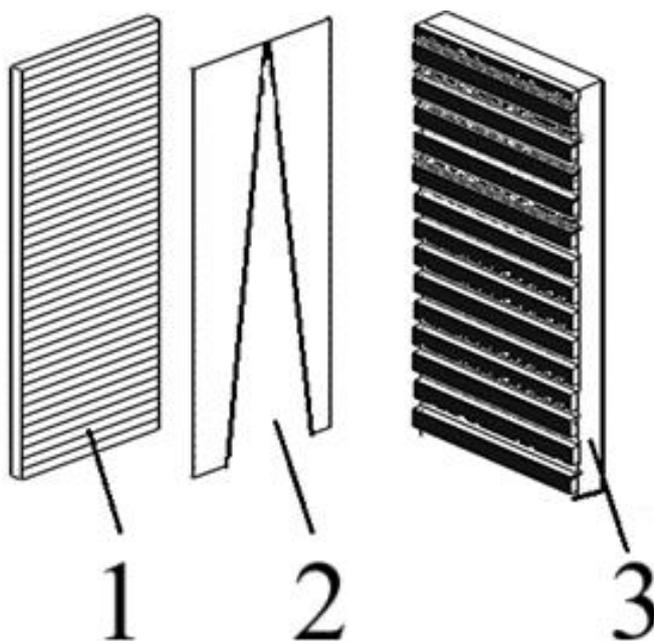


1 – вращающееся основание держателей подложек; 2 – подложкодержатели; 3 – диэлектрическая мишень; 4 – металлическая мишень; 5 – ионные источники, распыляющие мишени; 6 – ионный источник для очистки подложек; 7 – поток атомов, конденсирующихся на подложку; 8 – V-образный экран

Рисунок 2.1 – Схема распылительной камеры (вид сверху)

При синтезе многослойных тонкопленочных систем применяли послойное осаждение с двух распыляемых мишеней различных составов. Процесс осуществлялся в аргонной атмосфере (99,998 % чистоты) при давлении $7 \cdot 10^{-4}$ Торр. Мишени, установленные на водоохлаждаемых медных основаниях ($280 \cdot 80$ мм²), располагались в различных зонах вакуумной камеры, а подложка перемещалась между ними посредством вращающегося держателя.

Осаждение проводили на подложках из монокристаллического кремния (ориентация (100)) для структурного анализа, ситалла для исследования электрофизических свойств и стекла для оптических измерений, при этом поддерживалась температура подложке, которая была равна комнатной температуре. Для формирования слоёв с различной толщиной в рамках одного технологического цикла использовался специальный V-образный экран (рисунок 2.2).



1 – Подложкодержатель; 2 – V-образный экран; 3 – Мишень

Рисунок 2.2 – Расположение V-образного экрана в процессе напыления

Для получения тонких пленок с различным содержанием кобальта была использована составная мишень из кобальта и неравномерно установленных на ней навесок CoO , что позволило в одном технологическом цикле получить образцы с разным соотношением Co и CoO . Данный метод позволил синтезировать системы,

такие как нанокompозиты $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$. Для получения тонких пленок с различным содержанием $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ была использована составная мишень из $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ и неравномерно установленных на ней навесок SiO_2 , что позволило в одном технологическом цикле получить образцы с разным соотношением $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ и SiO_2 . Данный метод позволил синтезировать системы, такие как нанокompозиты $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_n(\text{SiO}_2)_{100-n}$.

За один оборот карусели на подложке формировался бислой, состоящий из двух различных материалов. Данный метод многослойные гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, и $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$. Первичное определение толщины пленок проводилось с помощью оптического интерферометра МИИ-4, где толщина одного бислоя вычислялась как отношение общей толщины к числу оборотов подложкодержателя. Полученные данные согласовывались с периодами слоистой структуры, измеренными методами малоугловой рентгеновской дифракции просвечивающей электронной микроскопией (ПЭМ).

2.2 Исследование структуры и фазового состава полученных образцов

2.2.1 Рентгеноструктурный фазовый анализ

Для аттестации структуры и фазового состава применялся метод рентгеноструктурного фазового анализа (РФА), который проводился на рентгеновском дифрактометре Bruker D2 Phaser ($\lambda_{\text{CuK}\alpha 1} = 1,54 \text{ \AA}$) с применением программного обеспечения DIFFRAC.EVA 3.0 и базой данных ICDD PDF Release 2012.

Расчет среднего размера кристаллитов проводили по формуле Шеррера [115]:

$$D = \frac{0,89\lambda}{b \cos \Theta}, \quad (2.1)$$

где λ – длина волны рентгеновского излучения (1,54 Å для $\text{Cu}_{\text{K}\alpha}$ излучения);

b – ширина рефлекса на полувысоте;

Θ – брэгговский угол;

D – средний размер кристаллов.

Для установления многослойной структуры были проведены рентгеноструктурный анализ в малых углах Брэгга. Значения периода многослойной структуры d рассчитывали по формуле Вульфа-Брэггов:

$$n\lambda = 2d\sin(\Theta), \quad (2.2)$$

где Θ – брэгговский угол;

n – порядок дифракционного максимума (в нашем случае $n = 1$);

λ – длина волны рентгеновского излучения.

2.2.2 Просвечивающая электронная микроскопия

Исследование поперечного сечения для структурной характеристики и уточнения толщины пленок проводили на просвечивающем электронном микроскопе Hitachi HT7700 (100 кэВ, W-источник) в Институте физики им. Л.В. Киренского ФИЦ КНЦ СО РАН и Libra 120, ЭМВ-100БР в ФГБОУ ВО "Воронежский государственный технический университет". Образцы готовили с помощью однолучевого ФИП (Hitachi FB2100) при 40 кэВ с последующей финишной полировкой низкоэнергетичными Ag^+ -ионами, что обеспечило толщину срезов $\approx 30 - 40$ нм. Для защиты от травления Ga^+ пучком поверхность пленок покрывали термически напыленным слоем аморфного SiO . Элементный состав пленок определяли на сканирующем электронном микроскопе Tescan MIRA 3 LMH с энергодисперсионной рентгеновской приставкой Oxford INCA Energy 250.

2.3 Измерение электрического сопротивления и термоэдс

Образцы исследованных гетерогенных систем, представляли собой ситалловые пластины с фиксированной шириной $3 \pm 0,15$ мм и длиной $40 \pm 0,1$ мм с напыленными на них тонкими гетерогенными пленками.

Концентрационные зависимости электрического сопротивления измерялись при комнатной температуре посредством измерения по 4-х проводной схеме на по-

стоянном токе при помощи цифрового мультиметра модели АКИП В7–78/1 (рисунок 2.3), позволяющего измерять электрическое сопротивление в диапазоне от 0,1 Ом до $1,2 \cdot 10^7$ Ом, что обеспечивало хорошую точность определения параметров тонкопленочных гетерогенных систем.

Для количественного анализа термоэлектродвижущей силы (ТЭДС) исследуемых систем вдоль образца создавался контролируемый температурный градиент величиной ≈ 75 К.

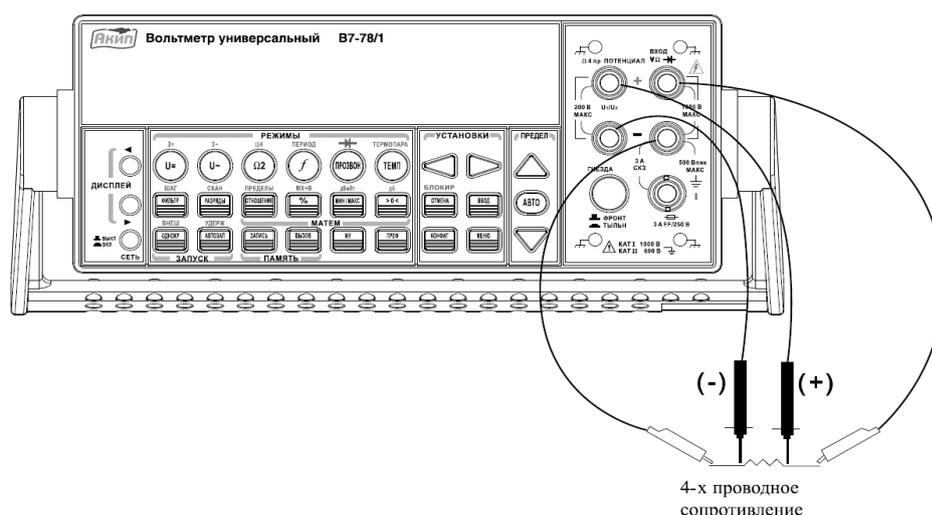


Рисунок 2.3 – Схематичное изображение измерения электрического сопротивления по 4-х проводной схеме на постоянном токе исследуемых тонкопленочных гетерогенных систем

При этом «холодный» конец образца стабилизировался на уровне комнатной температуры (T_K), что позволяло минимизировать температурные флуктуации в данной зоне [116].

Значение ТЭДС рассчитывалось по следующей скорректированной формуле, учитывающей вклад ТЭДС, возникающей в серебряных контактных зондах:

$$S = \frac{U}{T - T_K}, \quad (2.3)$$

где U – напряжение, возникающее между горячим и холодным концами образца при помощи высокочувствительного вольтметра Agilent 34420A;

T – температура горячего конца образца;

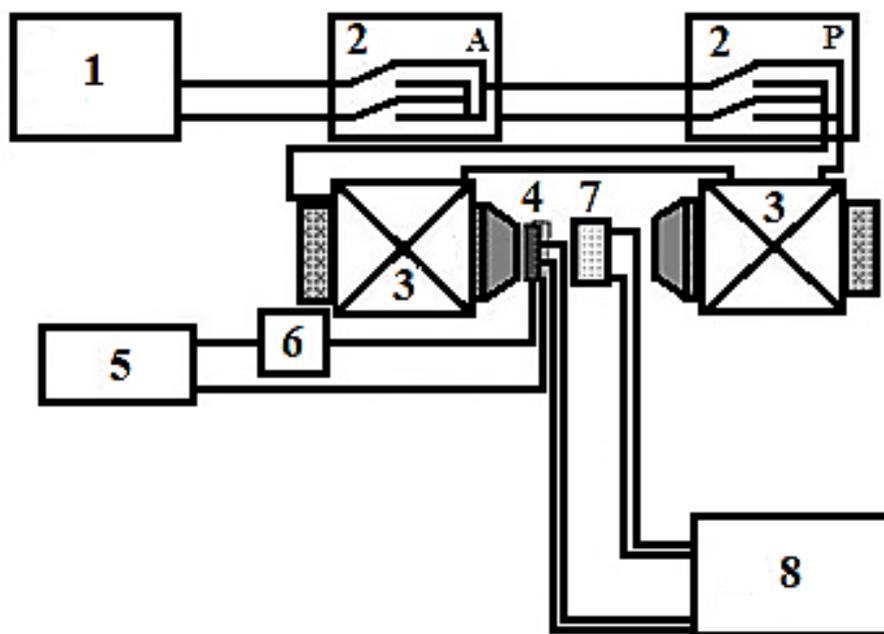
T_K – температура холодного конца образца, соответственно измеренные при помощи цифрового мультиметра АК ИП В7–78/1 (пересчет из ЭДС термопары в температуру осуществлялся с помощью градуировочного полинома).

Относительная погрешность измерения значений ТЭДС составила $\geq 3\%$.

Проведение серий повторных измерений позволили учесть случайные погрешности и обеспечить воспроизводимость полученных результатов.

2.4 Измерение магнитосопротивления и магнитных свойств

Для исследования влияния внешнего магнитного поля на электрическое сопротивление (МС) полученных гетерогенных систем, использовалась специализированная экспериментальная установка, схема которой представлена на рисунке 2.4.



1 – источник питания электромагнитов, 2 – переключатель полярности магнитов (основной + запасной), 3 – электромагниты, 4 – датчик магнитного поля (Холла), 5 – источник постоянного тока, 6 – амперметр, 7 – образцы (2 шт.), 8 – цифровой мультиметр АК ИП В7–78/1 с компьютером

Рисунок 2.4 – Схематическое изображение установки для измерения МС и магнитных свойств

Питание магнитной системы осуществлялось путем подачи напряжения с источника питания АКПП–1148 (1) на обмотки катушки электромагнита. Для инвертирования полярности напряжения, подаваемого на обмотки катушки электромагнита (3) используются 2 переключающих элемента (первый основной (автоматический), второй запасной (ручной)) (2), напряженность магнитного поля в рабочем зазоре между электромагнитами определялось с помощью использования датчика Холла (4), запитанного от стабилизированного источника постоянного тока (5). Стабильность датчика Холла контролировалась с помощью амперметром (6). При этом расстоянии между кернами электромагнитов составляло порядка ≈ 2 см, постоянное магнитное поле в зазоре электромагнитов может достигать величины порядка 0,9 Тл.

Магнисопротивление определялось путем регистрации изменения сопротивления образцов (7) цифровым мультиметром АКПП В7–78/1 (8) (по 4-х проводной схеме на постоянном токе) в двух противоположных направлениях, по следующему алгоритму:

« $0 \rightarrow +0,9$ Тл $\rightarrow 0 \rightarrow$ (изменение полярности) $\rightarrow 0 \rightarrow -0,9$ Тл $\rightarrow 0$ ». Время нарастания поля составляло 5 минут, общее же время измерения полевой зависимости (1 цикл) равнялось 20 минут. В некоторых экспериментах требовалось провести 2 полных (40 минут) цикла измерения полевых зависимостей. Управление магнитном полем осуществлялось специально написанной для АКППа–1148 программой, разработанной в среде LabVIEW.

Зависимости сопротивления от величины внешнего магнитного поля изучались при различных взаимных ориентациях поля электрического тока, а также плоскости пленки (рисунок 2.5):

1) Магнитное поле перпендикулярно плоскости образца и направлению электрического тока ($H \perp \text{пл}$, $H \perp I$) (рисунок 2.5а);

2) Магнитное поле параллельно плоскости образца и направлению электрического тока ($H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$) (рисунок 2.5б);

3) Магнитное поле параллельно плоскости образца и перпендикулярно направлению электрического тока ($H \parallel \text{пл}$, $H \perp I$) (рисунок 2.5в).

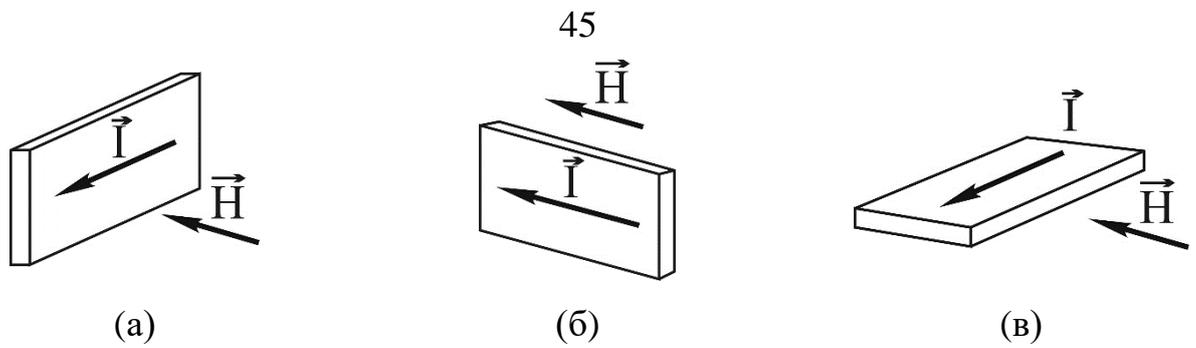


Рисунок 2.5 – Схематические изображения, поясняющие методику изучения зависимостей МС от напряженности внешнего магнитного поля при различных ориентациях поля, электрического тока и плоскости пленки:

($H \perp \text{пл}$, $H \perp I$) (а), ($H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$) (б), ($H \parallel \text{пл}$, $H \perp I$) (в)

Величину МС определяли исходя из выражения (2.4):

$$MC = [(R(H) - R(0))/R(0)] \cdot 100\%, \quad (2.4)$$

где $R(H)$ – значения электрического сопротивления, измеренные в магнитном поле;

$R(0)$ – значения электрического сопротивления, измеренные без поля соответственно.

Для исследования эффекта МС при низких температурах т.е. при температуре кипения жидкого азота (77 К) использовался проточный криостат (рисунок 2.6).

В погружённом в сосуд Дьюара криостате (1) размещались 2 образца (5), а между ними находился терморезистор РТ–100 (4). Формула, связывающая термо-сопротивления и температуры приведена ниже:

$$\begin{aligned} \text{когда } t < 0^\circ\text{C, то } R_t &= R_0 (1 + A_t + B_t^2 + C_t^3 \cdot (t - 100)); \\ \text{когда } 0^\circ\text{C} < t < 630^\circ\text{C, то } R_t &= R_0 \cdot (1 + A_t + B_t^2); \end{aligned} \quad (2.5)$$

где $A_t = \alpha \cdot (1 + \beta/100)$;

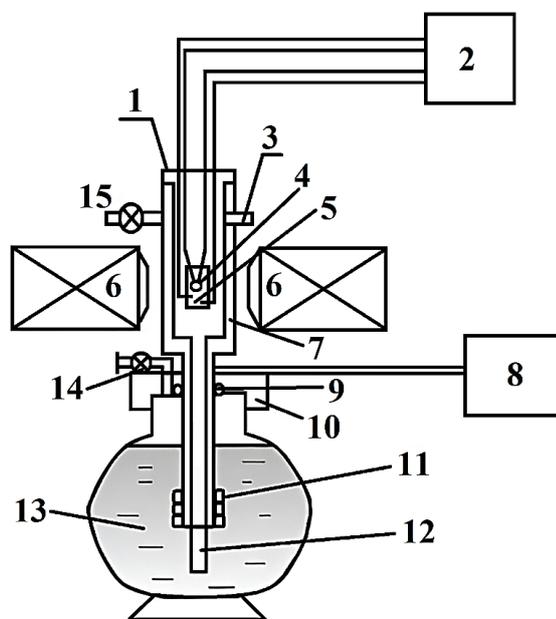
$B_t = -\alpha\delta \cdot 10^{-4}$;

$C_t = -\alpha\delta \cdot 10^{-8}$.

Криостат герметично соединялся с сосудом Дьюара посредством герметизирующей крышки (10) и резиновой прокладки и стального кольца (9) и устанавливался между кернами электромагнита (6), чтобы образцы находились в максимально

однородном магнитном поле. Выводы терморезистора подключались по 4-х проводной схеме к сканеру цифрового мультиметра АК ИП В7–78/1 (2).

Для обеспечения надёжной термоизоляции перед началом измерений объём криостата откачивался форвакуумным насосом через патрубок (15). Печь для испарения жидкого азота (11) получала питание от источника тока АК ИП–1105 с встроенным амперметром (8). В сосуде (13) создавалось повышенное давление паров азота, которое через патрубок (12) подавалось к образцам, обеспечивая эффективное охлаждение до 77 К. Процесс отогрева до комнатной температуры (≈ 40 минут до 280 К (5 К в минуту) и ≈ 55 минут до 290 К (4 К в минуту)) осуществлялся посредством открытия патрубка (3), что приводило к снижению избыточного давления паров азота.



- 1 – проточный криостат, 2 – цифровой мультиметр АК ИП В7–78/1 с компьютером, 3,14 – патрубок для отвода паров азота, 4 – терморезистор РТ–100, 5 – измеряемые образцы, 6 – электромагниты, 7 – вакуумная изоляция, источник питания испарителя, 9 – уплотнительные кольца, 10 – герметично уплотняющая крышка, 11 – испаритель азота, 12 – патрубок для подачи азота к образцам, 13 – сосуд с жидким азотом (Дьюара), 15 – патрубок для откачки воздуха

Рисунок 2.6 – Схематичное изображение установки для измерения МС и магнитных свойств при низких температурах

Также в исследованиях применялся вибрационный магнитометр модели Lake Shore 7404 VSM (кафедра магнетизма МГУ). Данная автоматизированная установка имеет чувствительность в диапазоне от 10^{-5} до 10^{-7} Гс·см³, с возможностью повышения чувствительности на несколько порядков после специализированных модификаций. Изображения локальной намагниченности были получены с использованием микроскопа NEOARK Neomagnesia Lite ВН-753 с возможностью изучения меридионального магнитооптического эффекта Керра. Петли магнитного гистерезиса в диапазоне температур 2 – 300 К были получены с помощью вибрационного магнитометра Cryogen Free Measurement System (Cryogenic Ltd., Великобритания).

2.5 Измерение комплексной магнитной проницаемости на частоте 50 МГц

Для определения комплексной магнитной проницаемости в данной работе использовался резонансный метод, в котором измерения проводились с помощью измерителя добротности Е9-5А на частоте 50 МГц (рисунок 2.7) [28,118].

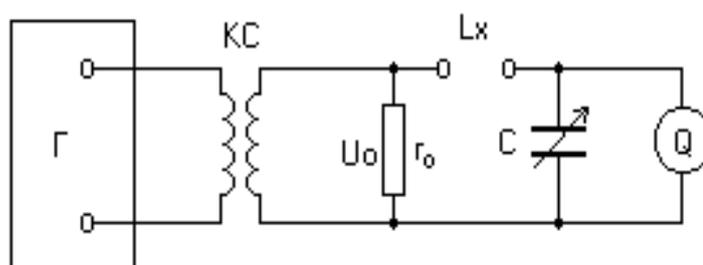


Рисунок 2.7 – Принципиальная схема Q-метра для измерения индуктивности и добротности

Колебательный контур, состоящий из внешней катушки индуктивности и внутренней подстраиваемой емкости, на определенной частоте (f) настраивался в резонанс. Параметрами, снимаемыми с прибора, являлись C_0 – емкость колебательного контура без образца, Q_0 – добротность колебательного контура без образца. Далее в катушку индуктивности вносился образец, который выводил систему из

резонанса, и с помощью подстраиваемой емкости находился новый резонанс системы. В этом случае параметрами, снимаемыми с прибора, были C_I – емкость колебательного контура с образцом, Q_I – добротность колебательного контура с образцом и частота резонанса f . Зная, что добротность колебательного контура Q определяется уравнением [119]:

$$Q = \frac{\omega L}{R}, \quad (2.6)$$

где ω – циклическая частота;

L – индуктивность;

R – активное сопротивление, можно записать следующую систему уравнений:

$$\begin{cases} Q_0 = \frac{\omega L_0}{R} \\ Q_1 = \frac{\omega L'}{R + \omega L''} \end{cases}, \quad (2.7)$$

где L' – действительная часть индуктивности колебательного контура;

L'' – мнимая часть индуктивности колебательного контура с образцом,

L_0 – индуктивность катушки без образца. Решая систему уравнений, находим мнимую часть индуктивности колебательного контура с образцом L'' :

$$L'' = \frac{L'}{Q_1} - \frac{L_0}{Q_0}. \quad (2.8)$$

Выражение для индуктивности катушки имеет вид:

$$L_0 = \mu_0 \mu \frac{S_0 N^2}{l} \left(1 - \frac{8\pi R}{3l} \right), \quad (2.9)$$

где μ_0 – магнитная постоянная, равная $4\pi \cdot 10^7$ Гн/м;

S_0 – сечение катушки без образца;

N – количество витков катушки индуктивности;

l – длина катушки индуктивности;

R – радиус катушки индуктивности.

Подставляя формулу (2.8) в (2.9), находим мнимую часть комплексной магнитной проницаемости исследуемого образца:

$$\mu'' = \left(\frac{L'}{Q_1} - \frac{L_0}{Q_0} \right) \frac{1}{\mu_0 S_1 N^2 \left(1 - \frac{8\pi R}{3 l} \right)}, \quad (2.10)$$

где S_l – сечение катушки индуктивности с образцом. Величины L' и L_0 определяются из соотношений:

$$L' = \frac{K}{f^2 C_1}, \quad (2.11)$$

$$L_0 = \frac{K}{f^2 C_0}, \quad (2.12)$$

где K – индивидуальный численный коэффициент для измерителя добротности Е9-5А, равный $2,53 \times 10^{10}$;

f – частота резонанса.

Таким образом, окончательно мнимая часть комплексной магнитной проницаемости равна:

$$\mu'' = \left(\frac{1}{Q_1 C_1} - \frac{1}{Q_0 C_0} \right) \frac{IK}{\mu_0 S_1 N^2 f \left(1 - \frac{8\pi R}{3 l} \right)^2} \quad (2.13)$$

Для нахождения действительной части комплексной магнитной проницаемости μ' решается следующая система уравнений:

$$\begin{cases} L_0 = \mu_0 \frac{S_0 N^2}{l} \left(1 - \frac{8\pi R}{3 l} \right) \\ L' = \mu_0 \frac{(S_0 - S_1)}{l} N^2 \left(1 - \frac{8\pi R}{3 l} \right) + \mu_0 \mu' \frac{S_1}{l} N^2 \left(1 - \frac{8\pi R}{3 l} \right) \end{cases} \quad (2.14)$$

Отсюда

$$\mu' = \frac{l(L' - L_0)}{\mu_0 S_1 N^2 \left(1 - \frac{8\pi R}{3 l} \right)} + 1. \quad (2.15)$$

С учетом (2.14) и (2.15) получаем:

$$\mu' = \frac{IK}{\mu_0 S_1 N^2 f^2 \left(1 - \frac{8\pi R}{3 l} \right)} \left(\frac{1}{C_1} - \frac{1}{C_0} \right) + 1. \quad (2.16)$$

ГЛАВА 3 СТРУКТУРА ГЕТЕРОГЕННЫХ СИСТЕМ

3.1 Структура нанокomпозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$

На рисунке 3.1 представлены картины дифракции рентгеновских лучей от нанокomпозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных при напылении из составной мишени в атмосфере Ar (рисунок 3.1а) и атмосфере Ar + O₂ (98 % Ar + 2 % O₂) (рисунок 3.1б) [116,117].

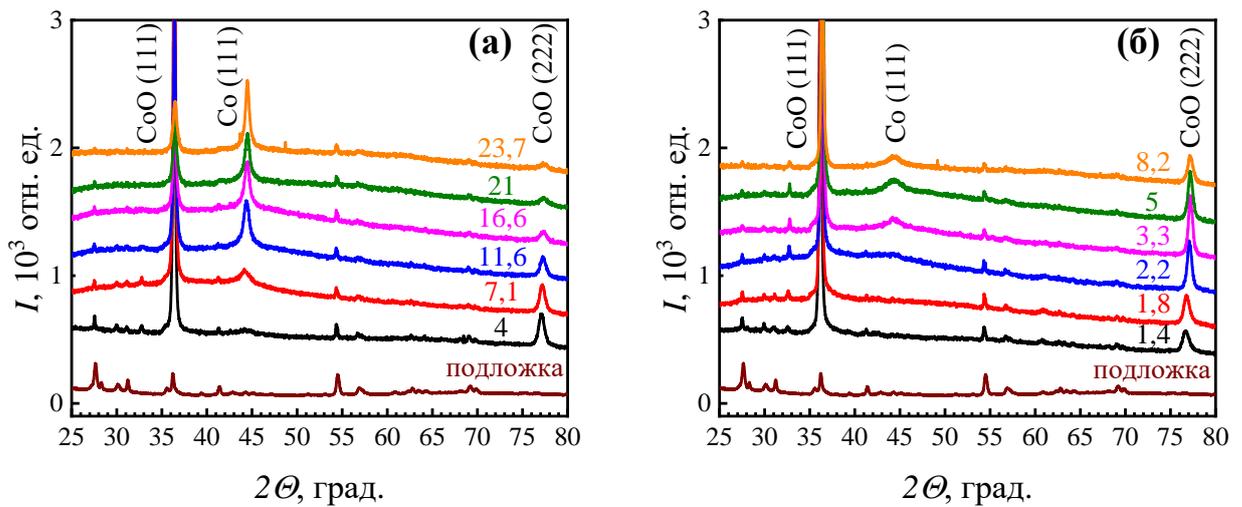


Рисунок 3.1 – Картины рентгеновской дифракции от нанокomпозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных при напылении в атмосфере Ar (а) и атмосфере Ar + O₂ (б) и ситалловой подложки СТ–50. Цифрами у кривых показано содержание металлического кобальта в ат. %

Конфигурация мишени и значения мощности на ионных источниках при этом не менялись. Анализ приведенных дифрактограмм показал, что полученные пленки являются двухфазными и состоят из текстурированных кубических фаз оксида кобальта CoO (пространственная группа $Fm-3m$) и металлического кобальта (пространственная группа $Fm-3m$). Полуколичественный анализ содержания металлической фазы кобальта проводился с использованием корундовых чисел, приводимых в карточках базы данных ICDD PDF Release 2012 (PDF 01-071-1178 для CoO и PDF 01071-4651 для Co). Полученные оценки массового содержания металлического Co для удобства последующего анализа переводились в атомные и составили от 2 до 24 ат. % металлического Co. Присутствие кубической модификации фазы

Co, которая является нестабильной при комнатной температуре, может быть связано как с фазовым размерным эффектом, так и с примесной природой наблюдаемой аномальной фазы [120].

Из оценок среднего размера областей когерентного рассеяния (ОКР), проведенных по формуле Шеррера [115] и приведенных на рисунке 3.2, следует, что с ростом содержания фазы металлического кобальта размер зерен CoO уменьшается, а Co – растет.

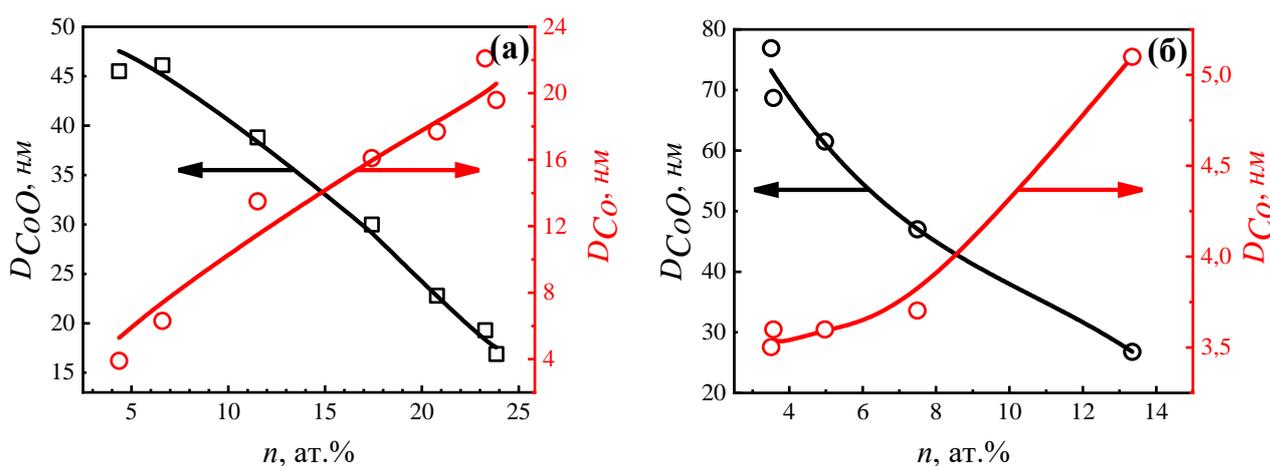


Рисунок 3.2 – Средний размер ОКР Co и CoO, для нанокompозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$, полученных в атмосфере Ar (а) и атмосфере Ar + O₂ (б)

При этом добавление O₂ при напылении приводит к уменьшению размеров зерен Co и росту зерен CoO. Рентгеноструктурный анализ показал, что средние размеры ОКР CoO для нанокompозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$ изменяются в пределах от 15 до 80 нм, а для Co не превышают 20 нм для нанокompозитов, напыленных в атмосфере Ar, и 5,5 нм для нанокompозитов, напыленных в атмосфере Ar+O₂. Для изучения структуры методами ПЭМ были получены пленки толщиной ≈ 60 нм. На рисунке 3.3 представлены результаты ПЭМ исследований нанокompозита $Co_{14}(CoO)_{86}$, полученной при распылении и осаждении в атмосфере Ar на подложку NaCl. Исследования методами ПЭМ (а) подтвердили выводы о наличии двух фаз (металлического Co и CoO) (рисунок 3.3).

Темнопольный анализ структуры в отражении 111 CoO (рисунок 3.3б) показал, что размер зерен матрицы в пленке данного состава изменяется в диапазоне от 3 до 15 нм.

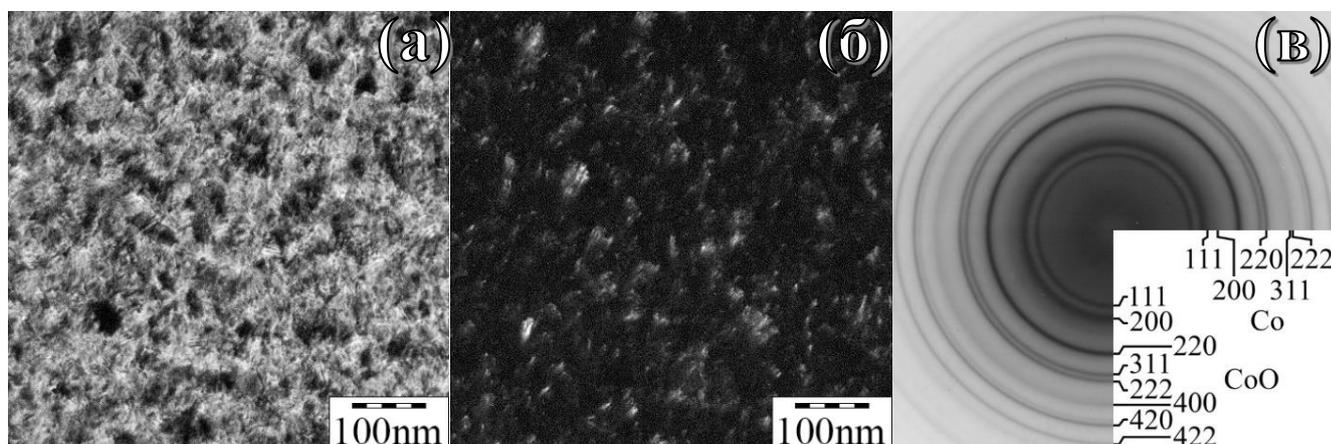


Рисунок 3.3 – Светлопольное (а) и темнопольное в отражении 111 CoO (б) ПЭМ изображения, а также фрагмент картины электронной дифракции от нанокompозита $\text{Co}_{14}(\text{CoO})_{86}$ (в), сконденсированной на подложке NaCl в атмосфере Ar

Как видно из электронограммы (рисунок 3.3в), для фазы CoO наблюдается ярко выраженная текстура $\langle 111 \rangle$, о чем свидетельствует очень интенсивный кольцевой рефлекс 220. Рефлексы, принадлежащие металлической фазе, очень слабые и сильно размыты, что свидетельствует о малом количестве и размере данных включений.

3.2 Структура многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$

На рисунке 3.4 представлены картины рентгеновской дифракции от многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ [121]. Цифрами у кривых показаны значения эквивалентной толщины прослоек Co (h_{Co}). Из анализа картин малоугловой дифракции следует, что в тонких пленках $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ наблюдается слоистая структура, о чем свидетельствует наличие максимумов в диапазоне $1 - 7^\circ$ и увеличение их интенсивности с ростом толщины прослоек Co. Величина периода многослой-

ных структур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ (толщина бислоя), рассчитанная из рисунка 3.4а, изменялась от 2,6 до 3,8 нм (для полученных многослойных гетероструктур значение толщины монослоя Co изменялось от 0,2 до 1,4 нм, а CoO составило $\approx 2,4$ нм). Общее число бислоев из условий получения составило 60, что соответствует диапазону толщин всех пленок от 156 до 228 нм. Форма пиков сложная, что в целом может быть интерпретировано как некоторое отклонение от периодичности (нерегулярность толщин отдельных слоев, связанная с их островковым ростом). Вероятно, несимметричность максимумов также является следствием формирования на межфазных границах $\text{Co}-\text{CoO}$ дополнительных прослоек, близких по составу к Co_3O_4 . Результаты анализа картин рентгеновской дифракции в области средних брэгговских углов $30 - 80^\circ$ не противоречат нашим предположениям.

Действительно, для всех исследованных многослойных гетероструктур в области углов $30 - 80^\circ$ наблюдаются ярко выраженные пики кубического CoO (111) и CoO (222), что указывает на сильную одноосную текстуру с осью $\langle 111 \rangle$.

Помимо фазы кубического CoO на дифрактограммах исследованных гетероструктур при толщинах прослоек Co более 0,8 нм были идентифицированы максимумы Co_3O_4 .

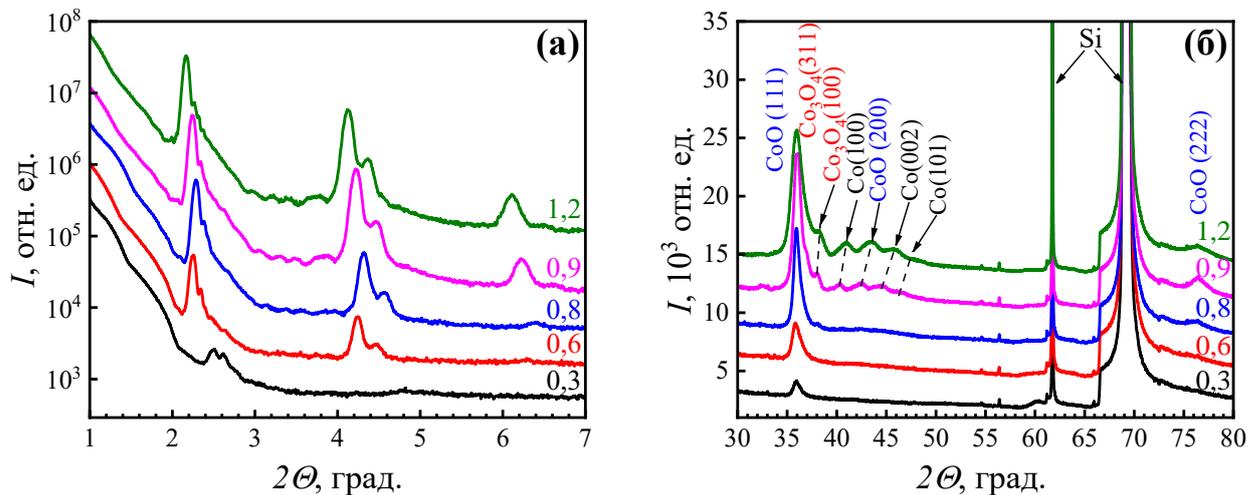


Рисунок 3.4 – Картины рентгеновской дифракции от многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, измеренные при малых (а) и средних (б) углах Брэгга. Цифрами у кривых показаны значения (нм) эквивалентной толщины h_{Co}

Что же касается металлической фазы исследованных многослойных гетероструктур, то для структур с эквивалентной толщиной h_{Co} не превышающих 0,8 нм (рисунок 3.4б) в интервале $40 - 50^\circ$ максимумы от металлического кобальта не наблюдаются и становятся различимыми на дифрактограммах лишь при эквивалентных толщинах $h_{\text{Co}} > 0,8$ нм. Следует отметить, что угловое положение рефлексов Co не совсем совпадает с табличными данными, что может указывать на наличие макронапряжений в самой многослойной пленке.

Исследования структуры методами ПЭМ подтвердили формирование прослоек Co и многослойной структуры (рисунок 3.5а), а картины дифракции быстрых электронов – кристаллическую структуру слоев Co и CoO (рисунок 3.5б).

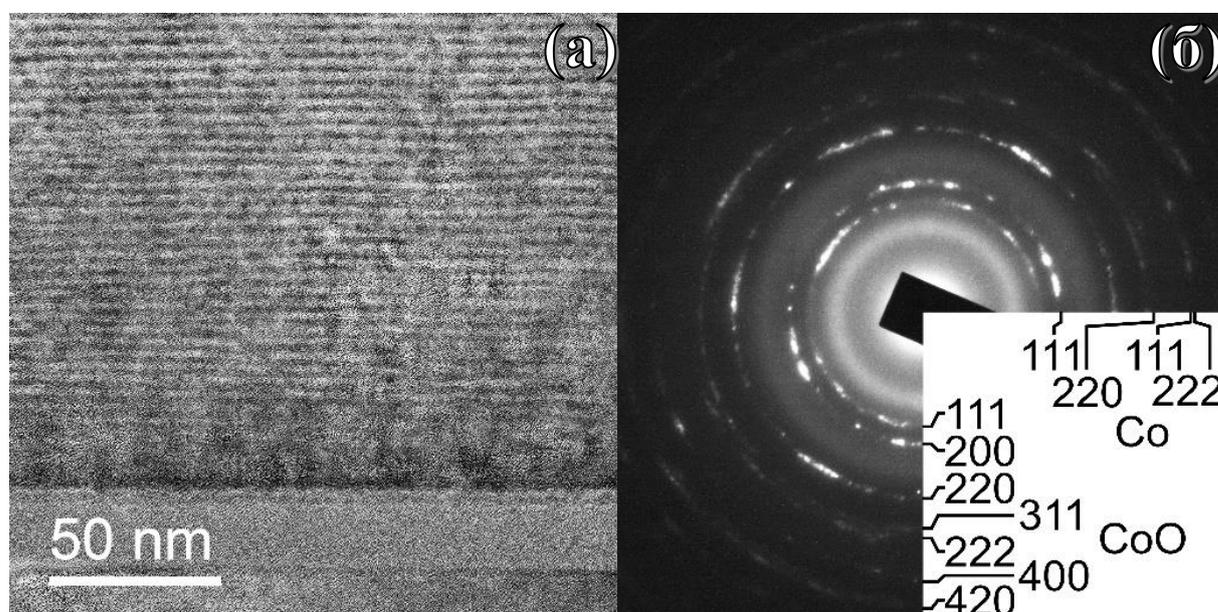


Рисунок 3.5 – Светлопольное ПЭМ изображение поперечного сечения (а) и электронограмма (б) от многослойной гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ ($h_{\text{Co}} \approx 0,7$ нм)

Значения толщин прослоек Co и CoO, полученные из изображений ПЭМ для исследуемой многослойной гетероструктуры, согласуются с результатами, полученными из картин дифракции рентгеновских лучей в области малых углов Брэгга (рисунок 3.4а).

3.3 Структура многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$

На рисунке 3.6 представлены картины рентгеновской дифракции от многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ с различной толщиной прослоек ZnO, нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ и пленки ZnO, полученных осаждением на вращающуюся подложку [122,143].

Рентгеновская дифракция в области малых углов Брэгга ($2\theta = 1 - 7^\circ$) выявила наличие дифракционных максимумов во всех исследованных многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ (рисунок 3.6а), что можно интерпретировать как наличие многослойной структуры пленок с различной толщиной прослоек. Следует отметить, что для референтных нанокompозитов $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ и пленок ZnO, полученных осаждением на вращающуюся подложку, максимумы в указанном диапазоне отсутствуют.

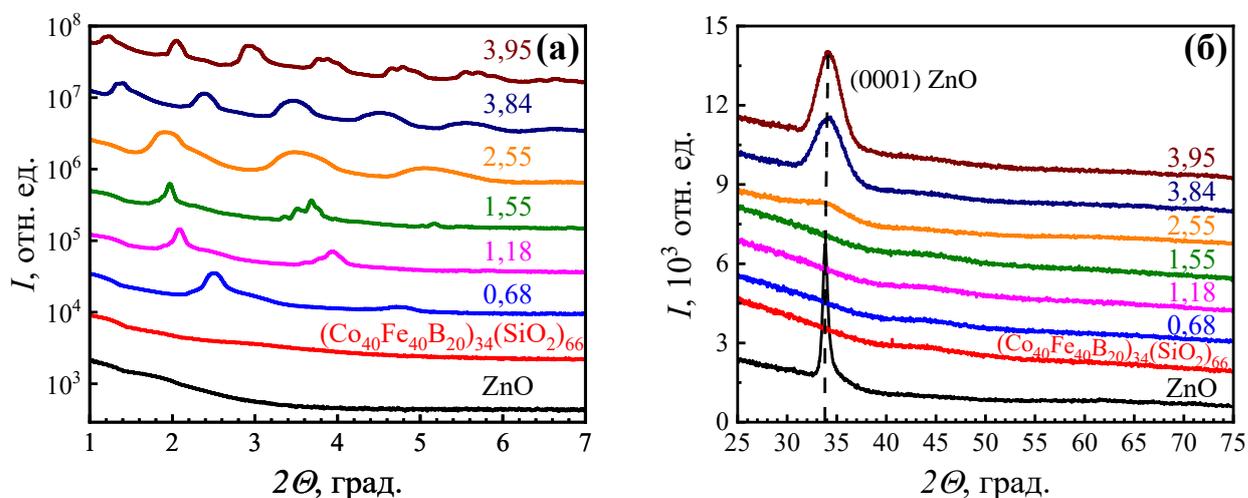


Рисунок 3.6 – Картины рентгеновской дифракции пленок ZnO, нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ и многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ с различной толщиной прослоек ZnO, измеренные при малых (а) и средних (б) углах Брэгга. Цифрами у кривых показаны толщины (нм) прослоек ZnO в составе многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$

Анализ рентгенограмм показал, что нанокompозитные прослойки в многослойных гетероструктурах, так же, как и референтного нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$, имеют аморфную структуру, а прослойки ZnO имеют гексагональную кристаллическую структуру с группой симметрии $P63mc$ (рисунок 3.6б) [123]. Следует отметить, что дифракционная картина пленки ZnO характеризуется наличием узкого дифракционного максимума при $2\theta \approx 34^\circ$ (рисунок 3.6б), который можно классифицировать как пик (0001) гексагональной ячейки ZnO. Увеличение толщины прослоек ZnO в многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ приводит к увеличению интенсивности дифракционного максимума ZnO (0001), однако его ширина существенно больше, чем наблюдаемая для чистого ZnO. Наличие только одного максимума отражения обусловлено сильной текстурой. При этом при малых толщинах прослоек кристаллическая структура ZnO, по-видимому, не формируется.

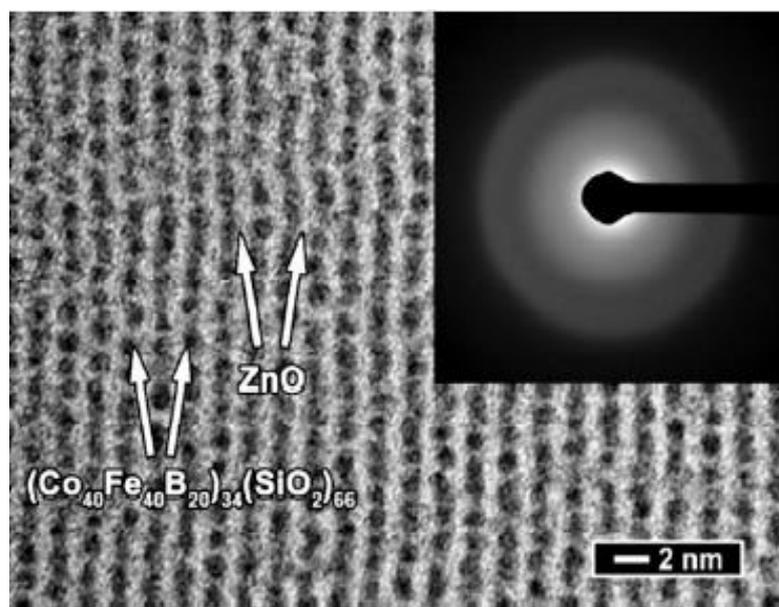


Рисунок 3.7 – Микроизображение поперечного сечения многослойной гетероструктуры $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, полученное с помощью ПЭМ (на вставке представлена дифракционная картина исследуемой пленки)

Дифракционные исследования с использованием ПЭМ (рисунок 3.7) подтвердили аморфную структуру составляющих слоев пленки при малой толщине

прослойк ZnO (вставка к рисунку 3.7), а микрофотографии поперечного сечения системы $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ – образование нанокompозитных прослоек $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ и многослойной структуры, при этом толщина прослоек в исследуемое многослойной гетероструктуре $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ составила $\approx 1,1$ нм, а для ZnO $\approx 1,2$ нм.

3.4 Структура многослойных гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$

На дифрактограммах гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ в области малых углов Брэгга ($2\theta = 1 - 7^\circ$) [124–127]. Наблюдаются максимумы (рисунок 3.8а), что свидетельствует об образовании слоистой структуры. Анализ дифрактограмм (рисунок 3.8б) полученных многослойных гетероструктур показал, что прослойки углерода имеют аморфную структуру, а прослойки ZnO гексагональную кристаллическую структуру.

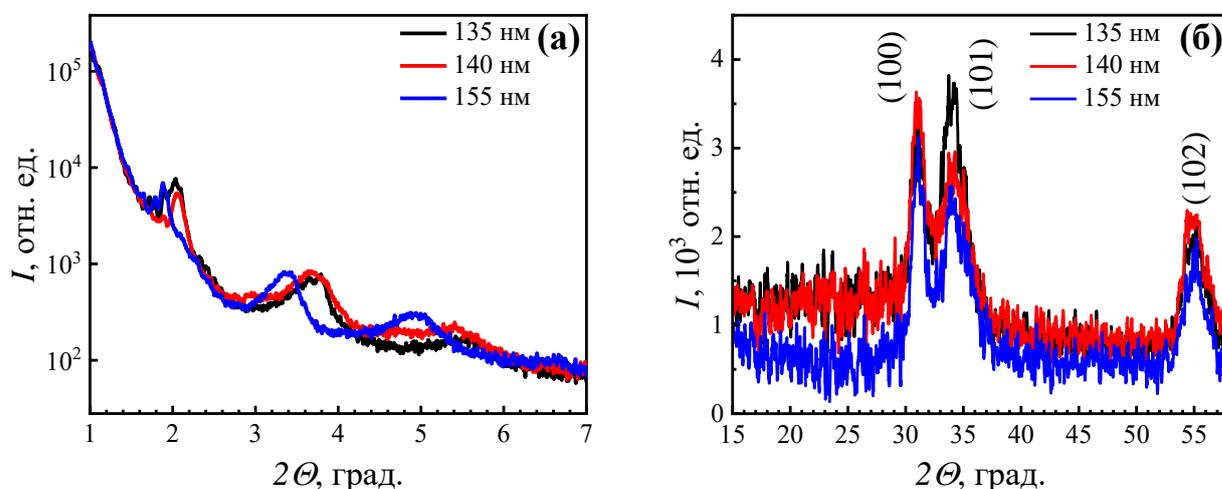


Рисунок 3.8 – Картины рентгеновской дифракции многослойных гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ измеренные при малых (а) и средних (б) углах Брэгга

Для дополнительного подтверждения многослойности полученной системы был проведен исследования поперечного сечения методами ПЭМ.

Анализ микрофотографий ПЭМ подтвердил сделанные ранее выводы о полученных многослойных гетероструктурах (рисунок 3.9).

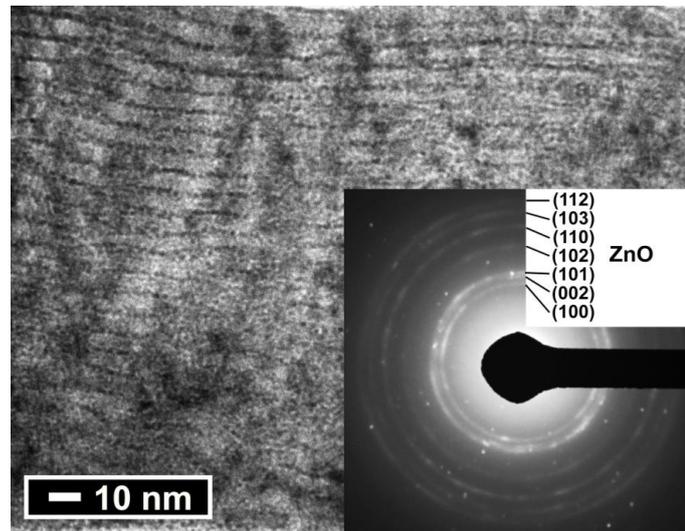


Рисунок 3.9 – ПЭМ-микрофотография поперечного сечения многослойной гетероструктуры $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ ($h \approx 145$ нм). На вставке показана электронограмма

Методом дифракции электронов также были выявлены фазы кристаллического оксида гексагонального ZnO, что проявляется в виде дугообразных рефлексов на картинах электронной дифракции (вставка на рисунке 3.9) и аморфного углерода (широкий гало).

ГЛАВА 4 ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В ГЕТЕРОГЕННЫХ СИСТЕМАХ

4.1 Порог протекания

Для описания электронного переноса в сложных гетерогенных структурах, коими являются нанокомпозиты и многослойные пленки металл–диэлектрик, применяется теория протекания (перколяции) [128]. В соответствии с этой теорией описывается процесс протекания электрического тока по решетке, в которой вместо неразорванных связей стоят одинаковые электрические сопротивления, соединяющие соседние узлы, а разорванным связям соответствует бесконечное электрическое сопротивление. Эффективная электропроводность такой среды σ отличается от нуля лишь при значении $n > n_c$, называемым ПП. Результаты исследования концентрационных зависимостей удельного электрического сопротивления (далее по тексту будет обозначаться ρ) в композитах металл–диэлектрик показывают, что практически все многофазные композиционные структуры обладают перколяционными свойствами [113].

Значение ПП зависит от состава гетерогенной системы, условий напыления и меняется для различных систем в широких пределах, а увеличение давления реактивных газов приводит к его смещению в сторону большей концентрации металлической фазы [113]. Исследование концентрационных зависимостей электрического сопротивления гетерогенных систем, проведенные в данной работе, позволили установить новые закономерности.

На рисунке 4.1 приведены зависимости ρ и термоэдс (далее по тексту будет обозначаться S) многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ от эквивалентной толщины h_{Co} , которые были получены распылением двух мишеней и послойного осаждения на вращающуюся подложку. Полученные зависимости характерны для перколяционных систем, для которых изменение ρ при переходе через ПП изменяется на несколько, в нашем случае почти на восемь порядков величины. При этом середину участка наиболее резкого изменения ρ и S можно интерпретировать как ПП в системе металл–диэлектрик, связанный с переходом от островковых прослоек Co к сплошным. В нашем случае такой переход происходит при эквивалентной толщине

$h_{Co} \approx 0,8$ нм, что сопровождается резким уменьшением по модулю значения S и слабой зависимостью от эквивалентной толщины h_{Co} в области $h_{Co} > 0,8$ нм. Знак S в синтезированных многослойных гетероструктурах отрицательный, что свидетельствует о доминирующем вкладе электронов в электроперенос. При этом значение S многослойных гетероструктур за III характерны для значений S чистого кобальта [129].

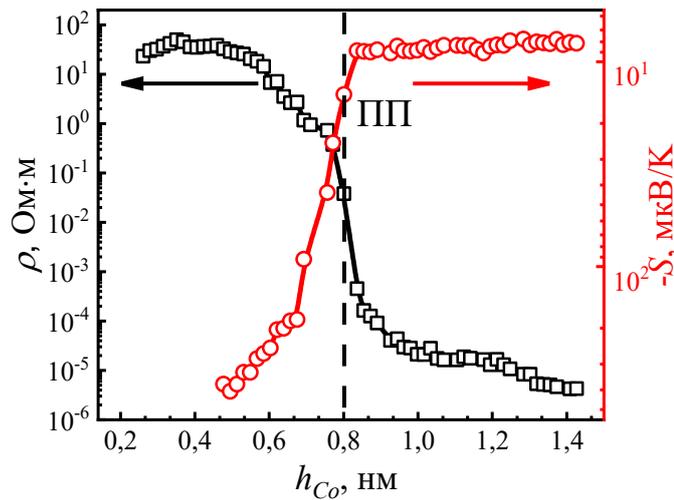


Рисунок 4.1 – Зависимости ρ и S многослойных гетероструктур $(Co/CoO)_{60}$ от эквивалентной толщины h_{Co}

Если же процесс распыления производить из составной мишени, состоящей из основания оксида кобальта с навесками из чистого кобальта, распределенных неравномерно, концентрационные зависимости выглядят иначе. На рисунке 4.2 представлены концентрационные зависимости ρ нанокмпозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$, измеренные при комнатной температуре для гетероструктур, полученных в атмосфере Ar и в атмосфере с добавлением O_2 (Ar + O_2). Для нанокмпозитов, полученных в Ar, при увеличении концентрации металлической фазы ρ немонотонно уменьшается примерно на 7 порядков величины (кривая 1 на рисунке 4.2). Полученная зависимость характерна для многих гетерогенных систем металл–диэлектрик [130], а значительное уменьшение ρ нанокмпозитов при увеличении концентрации металлической фазы связывается с переходом от неметаллического типа проводимости к металлическому.

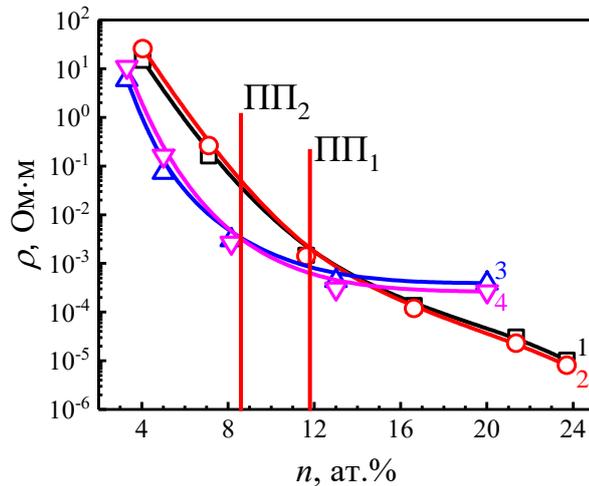


Рисунок 4.2 – Зависимости ρ нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ от содержания металлического кобальта n , полученных в Ar (1,2) и Ar + O₂ (3,4):
 1,3 – нанокompозиты в исходном состоянии; 2,4 – нанокompозиты после термической обработки в вакууме $P = 2,5 \cdot 10^{-4}$ Торр при $T = 520$ К

Для определения ПП протекания были проведены отжиги нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ при температуре $T = 520$ К, не приводящей к существенному изменению морфологии данных нанокompозитов. Из рисунка 4.2 видно, что в области малых концентраций металлической фазы отжиг приводит к повышению ρ нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, а при высоких значениях n сопротивление понижается относительно гетероструктур в исходном состоянии. Если предположить, что электроперенос нанокompозитов до ПП определяется диэлектрической матрицей, то очевидно, что уменьшение концентрации дефектов в CoO в процессе термообработки должно приводить к увеличению ρ гетероструктур, что и наблюдается в эксперименте. С другой стороны, для гетероструктур за ПП проводимость осуществляется по сетке соприкасающихся металлических гранул. Тогда уменьшение дефектности межкристаллических пространств между металлическими наночастицами в процессе термообработки должно приводить к уменьшению ρ проводящей сетки металлической фазы. В этом случае ПП в нанокompозитах $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ можно оценить по точке пересечения концентрационных зависимостей ρ структур в исходном состоянии и термообработанных. Оценки показали, что ПП приходится на 12,2 ат. % металлического Co для композитов, полученных в атмосфере Ar (ПП₁ на

рисунке 4.2) и на 8,3 ат. % металлического Co для нанокompозитов, полученных с добавлением O₂ (ПП₂ на рисунке 4.2).

Анализ полученных зависимостей выявил несколько не характерных для нанокompозитов особенностей. Во-первых, низкое по сравнению с другими нанокompозитами металл–диэлектрик [131] значение концентрации металлической фазы (≈ 12 ат. %), соответствующей ПП. Во-вторых, добавление O₂ приводит к сдвигу ПП в область меньшей концентрации металлической фазы и уменьшению ρ нанокompозитов Co_n(CoO)_{100-n} для составов, находящихся до ПП. В то же время ρ в нанокompозитах за ПП, полученных в атмосфере Ar + O₂, значительно выше, чем в нанокompозитах, синтезированных в атмосфере Ar [132].

Чтобы объяснить установленные закономерности изменения ρ , вернемся к морфологии синтезированных нанокompозитов. Исходя из большого различия размеров кристаллитов диэлектрической и металлической фаз, можно сделать предположение о неравномерном распределении их в нанокompозите. Так, мелкие металлические гранулы Co должны быть в основном сконцентрированы по границам кристаллитов CoO. Схематически подобная структура представлена на рисунке 4.3.

Добавление O₂ в процессе синтеза нанокompозитов Co_n(CoO)_{100-n} приводит к существенному уменьшению размеров кристаллитов Co (рисунок 3.2). Очевидно, что уменьшение размера частиц, расположенных на границах раздела кристаллитов CoO, приводит к уменьшению среднего расстояния между металлическими частицами, и, следовательно, увеличивает вероятность туннельного тока между ними. В нашем случае можно считать, что электроперенос полученных нанокompозитов определяется не всем объемом гетерогенной структуры, а только межкристаллитными областями по границам раздела CoO. Следовательно, проводящая металлическая сетка образуется в ограниченном объеме, для чего требуется не очень высокая концентрация металлической фазы относительно всего объема гетероструктуры.

Это объясняет низкое значение концентрации металлической фазы Co ≈ 12 ат. %, соответствующей ПП. Как уже отмечалось выше, при добавлении O₂ размер частиц Co уменьшается.

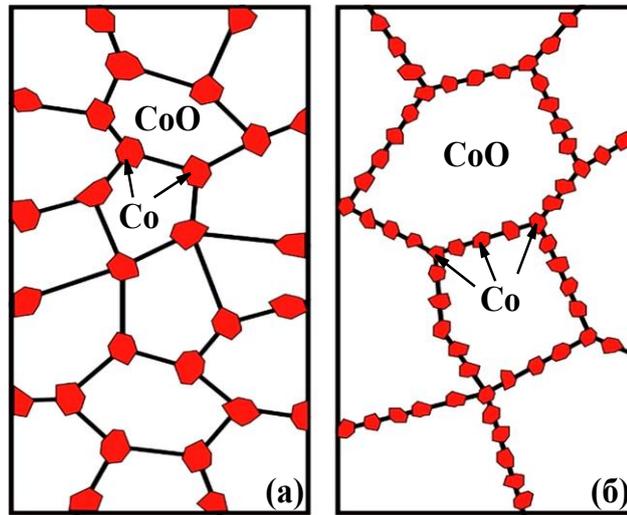
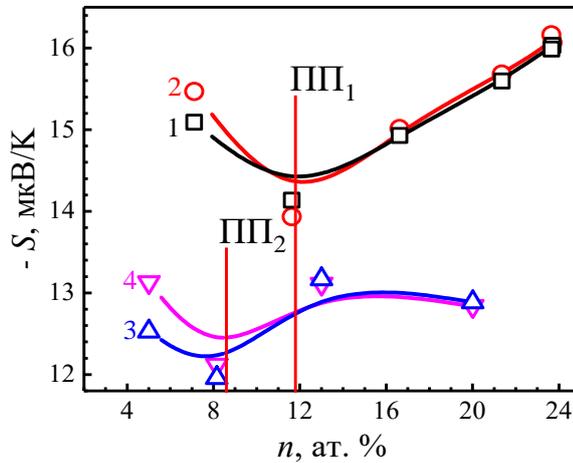


Рисунок 4.3 – Модели структуры нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ синтезированных в Ar (a) и Ar + O_2 (б)

Следовательно, при таком же содержании металлической фазы, как и для гетероструктур, полученных в атмосфере Ar, увеличивается их количество, что приводит к более равномерному их распределению по границам зерен CoO и уменьшению туннельных зазоров между ними. Как следствие, требуется меньше металлической фазы для образования сплошной проводящей металлической сетки, т.е. при уменьшении размера частиц ПП сдвинется в сторону меньшей концентрации металлической фазы n в нанокompозите $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$. При формировании проводящей сетки её ρ будет зависеть от размеров частиц металлического кобальта, однородности их случайного распределения по поверхности интерфейса, площади и качества контакта между ними. Большие металлические частицы создают сетку с меньшим ρ . Этим объясняются меньшие значения ρ нанокompозита $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученного в инертной атмосфере, в сравнении с гетероструктурами, полученными в смешанной среде, после ПП.

На рисунке 4.4 представлены концентрационные зависимости S синтезированных нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$. Все измеренные значения S отрицательны и по абсолютному значению меньше S объемного кобальта при указанных температурах (около ≈ 27 мкВ/К [133]). Из анализа полученных зависимостей следует, что для нанокompозитов, напыленных в атмосфере Ar, S характеризуется минимумом

(по модулю) вблизи ПП, и при введении O_2 в атмосферу напыления форма зависимостей в целом сохраняется. Наличие O_2 в атмосфере напыления приводит к общему уменьшению S по абсолютному значению и сдвигу минимума в сторону меньших концентраций металлической фазы.



Рисунке 4.4 – Зависимости S нанокompозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$ от содержания металлического кобальта n , полученных в Ar (1,2) и Ar + O_2 (3,4).

1,3 – нанокompозиты в исходном состоянии; 2,4 – нанокompозиты после термической обработки в вакууме $P = 2,5 \cdot 10^{-4}$ Торр при $T = 520$ К

Для нанокompозитов до ПП S определяется, с одной стороны, процессами непосредственного туннелирования электронов из одной металлической гранулы в другую, а с другой стороны – прыжковым электропереносом по локализованным состояниям матрицы CoO [134]. В первом случае уменьшение туннельных зазоров между частицами металлического Co должно приводить к росту туннельной S .

Тогда с ростом доли металлической фазы S должна увеличиваться для нанокompозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$ до ПП. Более того, S для нанокompозитов, полученных в смешанной атмосфере Ar + O_2 , должна быть выше, чем для нанокompозитов, полученных в среде Ar.

Как видно из рисунка 4.4, такие зависимости в нашем эксперименте не наблюдаются, что позволяет предположить, что электропроводность нанокompозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$ до ПП носит прыжковый характер.

В нанокompозитах за ПП, где проводимость имеет диффузионный характер, окисление гранул металлического кобальта приводит к уменьшению поверхности их контакта друг с другом, что может препятствовать транспорту электронов и соответственно приводить к понижению S . Следовательно, введение O_2 в атмосферу напыления может заметно повысить туннельную S в нанокompозитах до ПП и диффузионную S в нанокompозитах за ПП.

Таким образом, из совместного анализа зависимостей ρ и S нанокompозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$, полученных в атмосфере Ar и атмосфере Ar + O_2 , следует, что добавление O_2 в камеру в процессе напыления приводит главным образом к изменению электрических свойств за счет топологических изменений структуры нанокompозита $Co_n(CoO)_{100-n}$.

На рисунке 4.5а представлены зависимости ρ нанокompозитов $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_n(SiO_2)_{100-n}$ от концентрации металлической фазы $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ (обозначенной как n), измеренные при комнатной температуре.

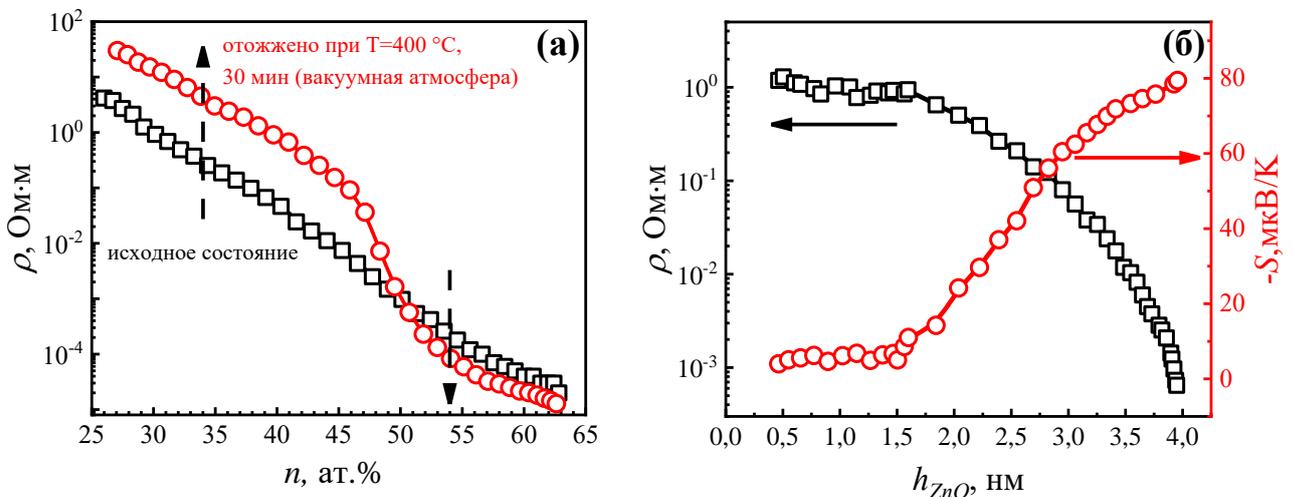


Рисунок 4.5 – ρ пленок композита $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_n(SiO_2)_{100-n}$ в зависимости от содержания металлической фазы n (а) и ρ, S многослойных гетероструктур $\{[(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{34}(SiO_2)_{66}]/[ZnO]\}_{50}$ в зависимости от толщины прослоек ZnO (б)

В случае композитной мишени с неравномерным расположением кремниевых пластин на металлической пластине $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ при распылении концентрация металлической фазы n изменяется от 25 до 64 ат. %, что приводит к нелинейному уменьшению ρ системы $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_n(SiO_2)_{100-n}$ примерно на 5 порядков (черная

кривая на рисунке 4.5а). Полученная зависимость типична для многих гетерогенных систем металл–диэлектрик, а существенное уменьшение ρ композитов с ростом концентрации металлической фазы связано с переходом от неметаллического типа проводимости к металлическому.

Характерной особенностью данной зависимости является отклонение от монотонного поведения для составов, расположенных вблизи ПП, что особенно заметно после термообработки в вакуумной атмосфере при $T = 400$ °С, 30 минут, не приводящей к кристаллизации аморфных фаз (красная кривая на рисунке 4.5а). При этом термообработка композитов приводит к увеличению ρ композитов, расположенных до и уменьшению за ПП (показано стрелками на рисунке 4.5а).

Таким образом, ρ выбранного для получения многослойных наноструктур композитного слоя состава $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ в зависимости от релаксированного состояния аморфной фазы и условий осаждения должно быть больше $1 - 10$ Ом·м, а сам композит следует отнести к доперколяционным.

Наличие прослоек ZnO, имеющего на 3 – 4 порядка меньшую величину ρ , по нашим данным составляющую $\approx 2 \cdot 10^{-4}$ Ом·м, должно приводить к снижению ρ многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, что и происходит [135]. Экспериментальные исследования ρ синтезированных многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ в зависимости от толщины полупроводниковых прослоек ZnO представлены на рисунке 4.5б. ρ многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ слабо изменяется с толщиной прослоек до $h_{\text{ZnO}} \approx 1,5$ нм, а затем уменьшается примерно на три порядка при $h_{\text{ZnO}} \approx 4$ нм (рисунке 4.5б). Следует отметить, что аналогичная картина наблюдалась для многослойных гетероструктур, полученных из композита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ с прослойками Si, C, Cu и Bi_2Te_3 [25]. Установлено, что если прослойка имела состав с $\rho \ll 5 \cdot 10^{-3}$ Ом·м, то значение $\rho(h)$ изменялось более чем на три порядка. В исследованной системе $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ прослойки ZnO также имеют более низкое значение ρ по сравнению с ρ композитных пленок вплоть до ПП (рисунков 4.5а), что также приводит к изменению ρ более чем на три порядка при изменении толщины прослоек ZnO (рисунок 4.5б).

Знак S в синтезированных многослойных гетероструктурах отрицательный, что свидетельствует о доминирующем вкладе электронов в электроперенос. S многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ слабо изменяется с толщиной прослоек до $h_{\text{ZnO}} \approx 1,5$ нм, значение $S \approx -6$ мкВ/К, что соответствует типичным значениям для композита $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_n)_{1-x}$ [136], это означает, что при малых толщинах h_{ZnO} вклад прослоек оксида цинка в S минимален, затем при увеличении толщины h_{ZnO} вклад становится преобладающим, и S приближается к значениям чистого ZnO, которые значительно выше (по модулю) [137,138].

Для объяснения наблюдаемых закономерностей рассмотрим последовательность роста полупроводникового слоя в процессе осаждения [139]. Многослойная гетероструктура $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ представляет собой сложную наногетерофазную систему, одним из основных параметров которой является толщина полупроводникового слоя (h_{ZnO}). При толщинах слоя оксида цинка менее $\approx 1,2$ нм полупроводниковая фаза имеет островковую структуру и сосредоточена преимущественно на металлических гранулах (в силу принципа минимизации внутренней энергии растущей пленки в процессе самоорганизации) (рисунок 4.6а).

Сформированная морфология не оказывает существенного влияния на процессы электропереноса в композитных слоях $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$. Увеличение толщин прослоек ZnO в диапазоне от 0,5 до 1,5 нм приводит к формированию каналов проводимости с меньшим сопротивлением.

При малых толщинах прослоек ZnO могут преобладать процессы электропереноса «металлическая гранула – полупроводник – диэлектрик – металлическая гранула» (рисунок 4.6б), что и наблюдается в синтезированных пленках (рисунок 4.5б) при $h_{\text{ZnO}} < 1,5$ нм.

С увеличением h_{ZnO} вклад в проводимость переходов «металлическая гранула–полупроводник–металлическая гранула» будет увеличиваться, а при толщине прослоек ZnO более 2 нм электрическое сопротивление полностью определяется этими проводящими каналами ZnO (рисунок 4.6в).

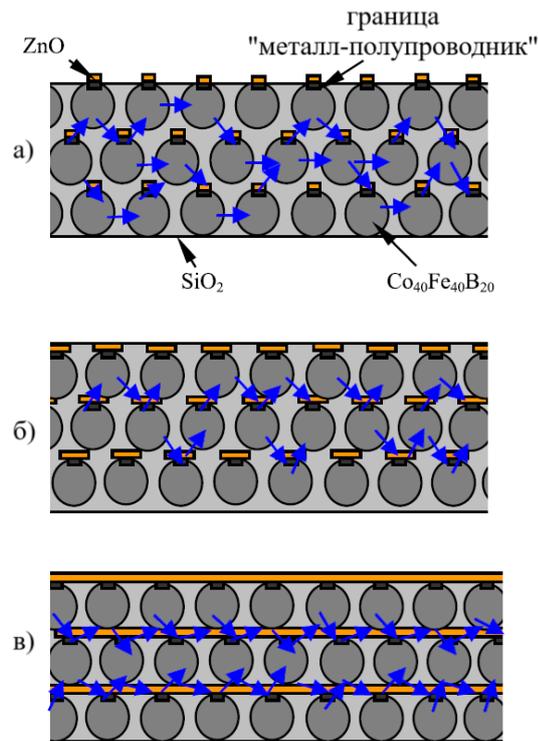


Рисунок 4.6 – Модельное представление возможных путей тока (синие стрелки) в многослойной гетероструктуре $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ в зависимости от толщины ZnO: а – образование островков полупроводниковой фазы ZnO; б – рост островков ZnO; в – образование квазисплошного слоя ZnO

Некоторое противоречие в оценках толщины островкового слоя пленки ZnO по результатам ρ и исследования морфологии с помощью ПЭМ, где при толщинах $\approx 1,2$ нм образуются квазисплошные прослойки ZnO, может быть связано с применением разных типов подложек для ПЭМ (монокристаллический Si (001)) и для измерения электрических свойств (использовались подложки из стеклокерамики с большей шероховатостью).

4.2 Механизмы проводимости

Электрические свойства гранулированных нанокмозитов радикальным образом зависят от соотношения металлической и диэлектрической фаз в материале. Существуют два принципиально разных режима проводимости в композитах, определяемых объёмным соотношением диэлектрической и

металлической фазы и, соответственно, структурой материала: металлический режим и неметаллический [11]. Неметаллический режим проводимости реализуется в том случае, когда объемная доля металлической фазы в композите меньше ПП. Структура такого материала состоит из электрически изолированных друг от друга металлических наногранул, разделённых диэлектрическими прослойками. Диэлектрический режим характеризуется высокими значениями ρ , увеличивающимися на несколько порядков при уменьшении доли металла в композите от ПП до 0 %. При охлаждении электросопротивление композитов возрастает и в интервале температур 4,2 – 300 К изменение ρ достигает нескольких порядков.

Металлический режим проводимости реализуется в том случае, когда объемная доля металлической фазы в материале превышает ПП, т.е. размеры и количество гранул в единице объема возрастают настолько, что происходит формирование проводящих кластеров и сплошных металлических каналов (цепочек из взаимно контактирующих друг с другом гранул), пронизывающих весь материал и обеспечивающих преимущественно металлический тип проводимости. Между каналами существуют диэлектрические области, которые увеличивают общий уровень электрического сопротивления материала, но не влияют на механизм проводимости в целом. В этом режиме материал ведет себя как металлический проводник, хотя те его свойства, которые зависят от длины свободного пробега электрона, значительно изменены вследствие сильного рассеяния на границах гранул. Например, электрическая проводимость таких композитов меньше в несколько раз относительно значений, характерных для чистых металлов или металлических сплавов [11].

Как с фундаментальной, так и с практической точки зрения наибольший интерес представляет именно неметаллический режим проводимости. Для описания электрических свойств нанокомпозитов в этом случае предложено несколько механизмов проводимости, которые реализуются в различных температурных интервалах. Основным механизмом в таких сложных гетерогенных системах является прыжковый механизм, для которого справедливо уравнение:

$$\rho(T) = \rho_0(T) \exp[(T_0/T)]^p \quad (4.1)$$

где $\rho_0(T)$ – предэкспоненциальный множитель, в общем случае зависящий от температуры T ;

T_0 – характеристическая температура;

$p = 1$ для механизма прыжковой проводимости по ближайшим соседям (ППБС) [140,141];

$p = 1/4$ для прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка моттовского типа (ПППДП Мотта) в случае объемного образца (3D Мотт) [141];

$p = 1/3$ для ПППДП Мотта в случае тонких пленок (2D Мотт) [141];

$p = 1/2$ в случае ПППДП типа Эфроса–Шкловского [142]

В исследуемых в работе гетерогенных системах все перечисленные случаи в зависимости от состава, условий получения и морфологии были обнаружены и рассмотрены ниже.

4.2.1 Прыжковая проводимость по Эфросу–Шкловскому (закон «1/2»)

На рисунке 4.7 представлены температурные зависимости ρ в интервале температур 80 – 280 К пленок нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$, полученных на «вращающуюся подложку» за 100 циклов осаждения при прохождении подложки в зоне распыления мишени. Увеличение толщины пленки сопровождается снижением величины ρ во всем исследованном интервале температур [143].

Для нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ (рисунок 4.7а) различной толщины наблюдается уменьшение ρ с ростом температуры, при этом температурный коэффициент сопротивления с уменьшением толщины – увеличивается. Наблюдаемые закономерности могут быть связаны как с влиянием поверхностных состояний, так и/или доокислением пленок за время прохождения подложек вне зоны осаждения.

Анализ экспериментальных результатов ρ проводили путем линеаризации экспериментальных зависимостей. Из рисунка 4.7б видно, что в интервале температур 80 – 280 К температурные зависимости ρ спрямляются в координатах

$\ln(\rho) \propto f(T^{-1/2})$. Такая зависимость может быть объяснена в рамках механизма ПППДП типа Эфроса–Шкловского [142].

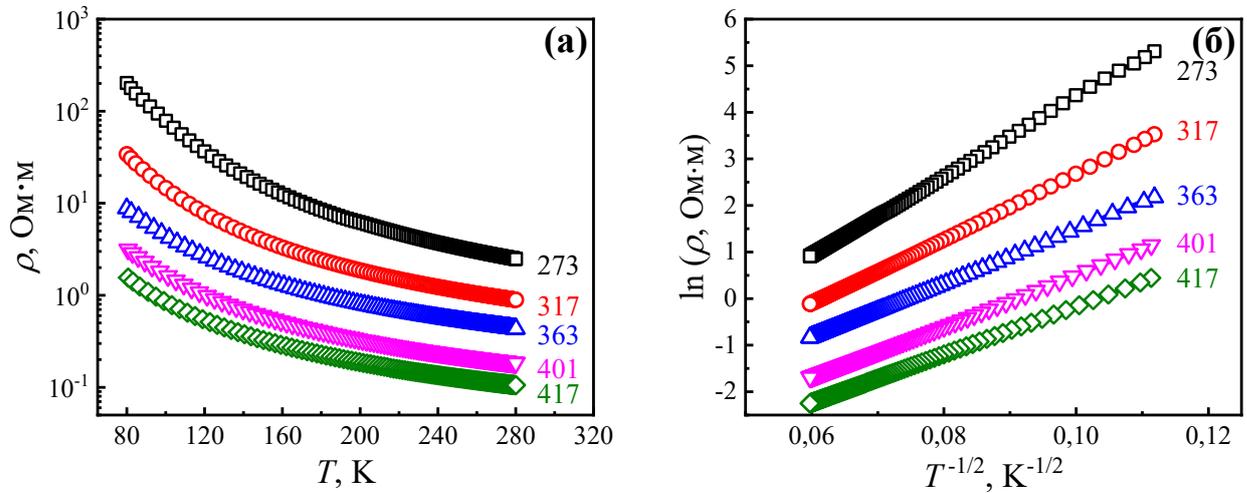


Рисунок 4.7 – Температурные зависимости ρ пленок нанокompозита $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{34}(SiO_2)_{66}$ разной толщины (указаны рядом с кривыми в нм), представленные в координатах $\rho \propto f(T)$ (а) и $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/2})$ (б)

При ПППДП типа Эфроса–Шкловского характеристическая температура определяется выражением (4.2):

$$T_{0_{\text{ЭШ}}} = \frac{2,8e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon a k_B}, \quad (4.2)$$

где e – заряд электрона;

ϵ_0 – электрическая постоянная;

ϵ – диэлектрическая проницаемость среды;

a – радиус локализации волновой функции;

k_B – постоянная Больцмана.

Зная характеристическую температуру Эфроса–Шкловского $T_{0_{\text{ЭШ}}}$ из выражения (4.2), можно оценить радиус локализации волновой функции a (4.3):

$$a = \frac{2,8e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon k_B T_{0_{\text{ЭШ}}}}. \quad (4.3)$$

Для оценки a воспользуемся значением диэлектрической проницаемостью $\epsilon = 4$, приводимой для оксида кремния согласно данным [144]. Полученные значения радиуса локализации волновой функции приведены в таблице 4.1.

Подставляя полученные значения a можно оценить значения средней длины $R_{ЭШ}$ и энергии прыжка $W_{ЭШ}$ по формулам 4.4 и 4.5 [140]:

$$R_{ЭШ} = \frac{1}{4} a \left(\frac{T_{0ЭШ}}{T} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (4.4)$$

$$W_{ЭШ} = \frac{1}{2} k_B T \left(\frac{T_{0ЭШ}}{T} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (4.5)$$

Предполагая, что кулоновская щель является «мягкой», т.е. плотность состояний обращается в нуль только в одной точке, получим оценки ширины кулоновской щели, которую можно приблизительно считать равной удвоенной энергией прыжка (таблица 4.1).

Полученные значения ширины кулоновской щели находятся в согласии со значениями, полученными для соединения $\text{LaMnO}_{3+\delta}$ в работе [145] и для тонких пленок Ca-Co-O [146].

Таблица 4.1 – Параметры нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$, рассчитанные на основе модели ПППДП типа Эфроса–Шкловского при $T = 100$ К

Толщина пленки, нм	$T_{0ЭШ}$, К	a , нм	$R_{ЭШ}$, нм	$W_{ЭШ}$, мэВ	Δ , мэВ
273	7197,9	1,3	2,8	36,6	73,2
317	4780,8	1,9	3,4	29,8	59,6
363	3317,9	2,8	4,1	24,8	49,6
401	2957,3	3,2	4,3	23,4	46,8
417	2680,8	3,5	4,5	22,3	44,6

Отметим, что при получении соответствующего нанокompозита на неподвижную подложку ПППДП типа Эфроса–Шкловского (закон «1/2») переходит в ПППДП Мотта (закон «1/4») [147].

Такая закономерность связана с тем, что при напылении на неподвижную подложку на уровне Ферми образуется конечная плотность локализованных состояний, связанных с кислородными вакансиями, которые могут захватывать атомы остаточных газов при получении нанокompозита на вращающуюся подложку при

перемещении подложкодержателя от одной позиции осаждения к другой. В результате такого захвата вблизи уровня Ферми образуется щель, приводящая к ПППДП типа Эфроса–Шкловского (закон «1/2»).

В заключение этого раздела следует сказать, что подобный механизм проводимости наблюдается и для тонких пленок Са-Со-О, полученных методом высокочастотного магнетронного распыления [146].

4.2.2 Прыжковая проводимость по 2D Мотту (закон «1/3»)

Из исследованных температурных зависимостей ρ закону «1/3» удовлетворяют многослойные гетероструктуры $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$, полученные методом послойного осаждения на вращающуюся подложку. На рисунке 4.8а представлены температурные зависимости ρ при $T = 80 - 280$ К в нулевом магнитном поле.

С понижением температуры ρ растет, и, как видно из рисунка 4.6б, поведение в интервале $80 - 170$ К хорошо описывается механизмом ПППДП 2D Мотта (3.12) [141]:

$$\rho = \rho_0 \exp \left[\left(\frac{T_{0M}}{T} \right)^3 \right], \quad (4.6)$$

$$T_{0M} = \left[\frac{\beta}{a^2 k_B g(E_f)} \right], \quad (4.7)$$

где T – абсолютная температура;

β – безразмерная константа;

a – радиус локализации волновой функции электрона;

k_B – постоянная Больцмана;

$g(E_f)$ – плотность состояний на уровне Ферми.

Поскольку толщина углеродных слоев менее 1 нм (рисунок 3.9), под интерфейсами мы подразумеваем как сами границы раздела, так и соседние углеродные слои. Этот результат согласуется с результатами [124]. Кроме того, это означает

слабую проводимость S при низких температурах и высокую концентрацию дефектов интерфейса, что приводит к повышенной концентрации носителей заряда по сравнению с индивидуальным S или ZnO .

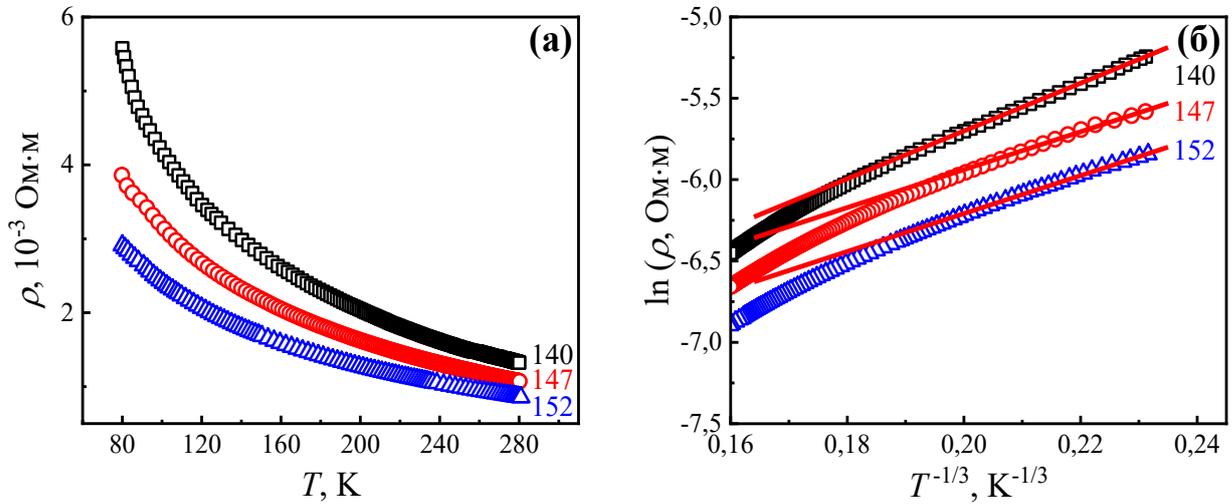


Рисунок 4.8 – Температурные зависимости ρ многослойных гетероструктур $(ZnO/C)_{25}$ разной толщины (указаны рядом с кривыми в нм), представленные в координатах $\rho \propto f(T)$ (а) и $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/3})$ (б)

Радиус локализации a можно оценить, как радиус Бора $a \approx a_B = \hbar^2 \epsilon / m e^2$ где ϵ – диэлектрическая проницаемость, а m – эффективная масса электрона. Для ZnO $\epsilon = 7,8$ и $m = 0,24$ [148], поэтому получаем $a = 1,73$ нм. Для прямоугольной формы плотность состояний $\beta = 13,8$ [142]. Тогда из рисунка 4.8б получаем T_{0M} и уравнения (4.7) можем оценить значения плотности локализованных состояний на уровне Ферми. Оценки величины $g(E_f)$ приведены в таблице 4.2.

Таблица 4.2 – Параметры многослойных гетероструктур $(ZnO/C)_{25}$, рассчитанные на основе модели ПППДП типа 2D Мотта, в интервале температур 80 – 170 К

Толщина пленки, нм	$T_{0M}^{1/3}, K^{1/3}$	T_{0M}, K	$g(E_f), 2D$ (эВ ⁻¹ ·см ⁻²)
140	14,97	3354,8	$1,6 \cdot 10^{15}$
147	13,58	2504,4	$2,1 \cdot 10^{15}$
152	12,97	2181,8	$2,5 \cdot 10^{15}$

Расчетное значение плотности состояний $g(E_f)$ для многослойных гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ примерно на два порядка меньше, чем в гетероструктурах $[\text{ZnO}-\text{C}]_{81}$, которые представляют собой скорее наноконкомпозиты со случайно распределенными ZnO и C, чем многослойные гетероструктуры [124].

Следовательно, расхождение в $g(E_f)$ в основном связано с различной микроструктурой и толщиной гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ и $[\text{ZnO}-\text{C}]_{81}$.

При толщинах $h \leq 140$ нм слои ZnO чередуются островковыми прослойками углерода, что приводит к уменьшению ρ в этом диапазоне толщин. С ростом размера островков в прослойке углерода последние соприкасаются, образуя квазидвухмерный перколяционный кластер. Это увеличивает концентрацию оборванных связей на межфазных границах и уменьшает ρ пленки. При наличии островков углерода реализуются условия сильной локализации на межфазных границах полупроводниковой многослойной структуры при наличии хаотического потенциала, обусловленного случайно распределенными сосредоточенными зарядами в области пространственного заряда [149].

4.2.3 Прыжковая проводимость по Мотту (закон «1/4»)

Исследования температурных зависимостей ρ показали, что закону «1/4» удовлетворяют наноконкомпозиты $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, многослойные гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной h_{Co} до $\approx 0,8$ нм (до ПП) и многослойные гетероструктуры $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ полученных методом послойного осаждения на вращающуюся подложку. Рассмотрим эти системы последовательно. Результаты исследований показали, что для наноконкомпозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, расположенных на ПП и за ПП ρ растет с температурой, что свидетельствует о металлическом механизме проводимости по сетке, образованной металлическими включениями Co (рисунок 4.9), который мы не обсуждаем.

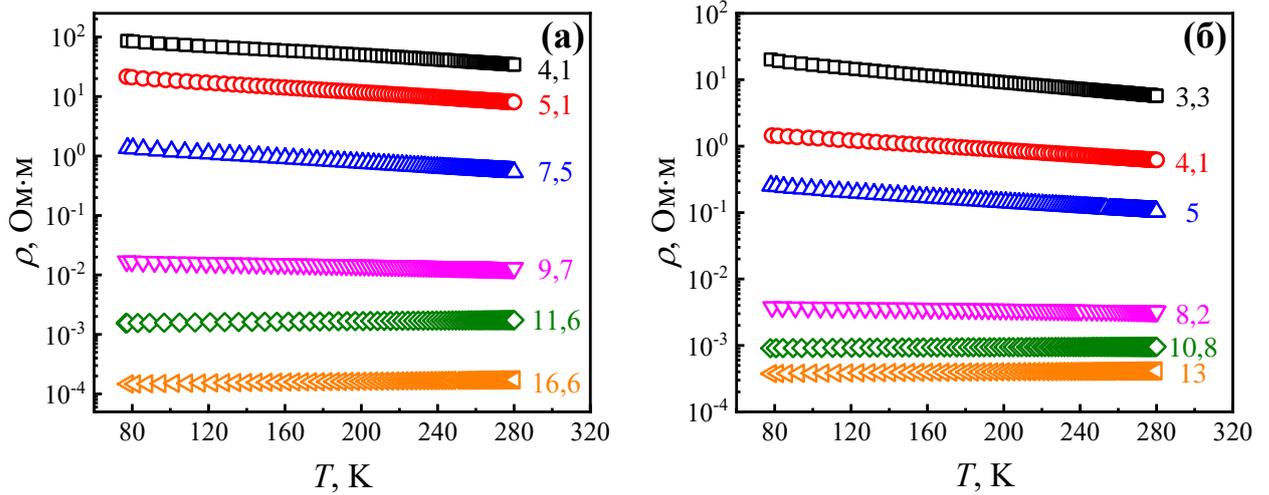


Рисунок 4.9 – Температурные зависимости ρ нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных в Ar (а) и Ar + O₂ (б). Цифрами у кривых показано содержание металлического кобальта в ат. %

Для составов, расположенных до ПП, ρ с ростом температуры понижается и подчиняется «закону 1/4» $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/4})$ в интервале 80 – 140 К (рисунок 4.10).

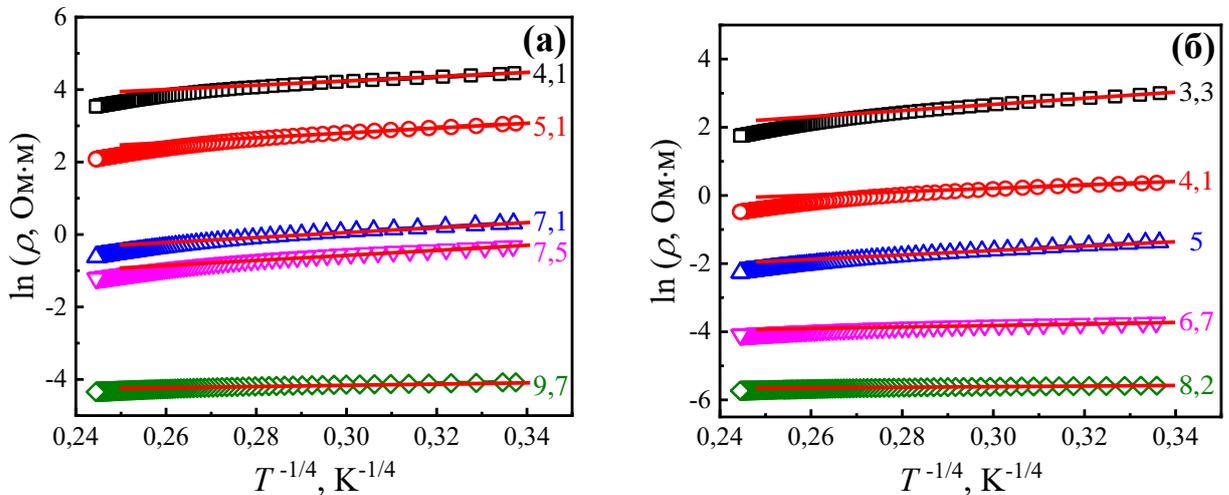


Рисунок 4.10 – Температурные зависимости ρ нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, представленные в координатах $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/4})$, полученных в Ar (а) и Ar + O₂ (б).

Цифрами у кривых показано содержание металлического кобальта в ат. %

Если интерпретировать выполнение «закона 1/4» как проявление ПППДП по локализованным состояниям в узкой полосе энергий вблизи уровня Ферми (ПППДП типа Мотта), тогда выражение (4.8) для проводимости имеет следующий вид [141]:

$$\sigma = e^2 \cdot R^2 \cdot v_{ph} \cdot g(E_f) \cdot \exp\left(-\frac{T_{0M}}{T}\right)^{\frac{1}{4}}, \quad (4.8)$$

где

$$T_{0M} = \frac{21}{a^3 \cdot k_B \cdot g(E_f)}, \quad (4.9)$$

e – заряд электрона;

R – расстояние прыжка;

v_{ph} – фактор спектра фононов взаимодействия;

T – абсолютная температура;

$g(E_f)$ – плотность состояний на уровне Ферми;

a – радиус локализации волновой функции электрона;

k_B – постоянная Больцмана.

Из рисунка 4.10 были определены значения величин T_{0M} для исследованных составов пленок.

Зная T_{0M} , и предполагая, что процесс переноса носителей заряда лимитируется прыжками между нанокристаллитами Co, для оценки плотности локализованных состояний принимаем радиус локализации $a \approx 5$ нм (средний размер кристаллитов Co).

Получены значения плотности состояний на уровне Ферми для разных составов тонких пленок (рисунок 4.11), проведены также оценки средней энергии прыжка по (4.10), которая в случае прыжков с переменной длиной прыжка (оценка была сделана при температуре 100 К) должна быть равна (4.11):

$$W_M = \frac{1}{4} k_B T \left(\frac{T_{0M}}{T}\right)^{\frac{1}{4}} \quad (4.10)$$

$$R_M = \frac{3}{8} a \left(\frac{T_{0M}}{T}\right)^{\frac{1}{4}} \quad (4.11)$$

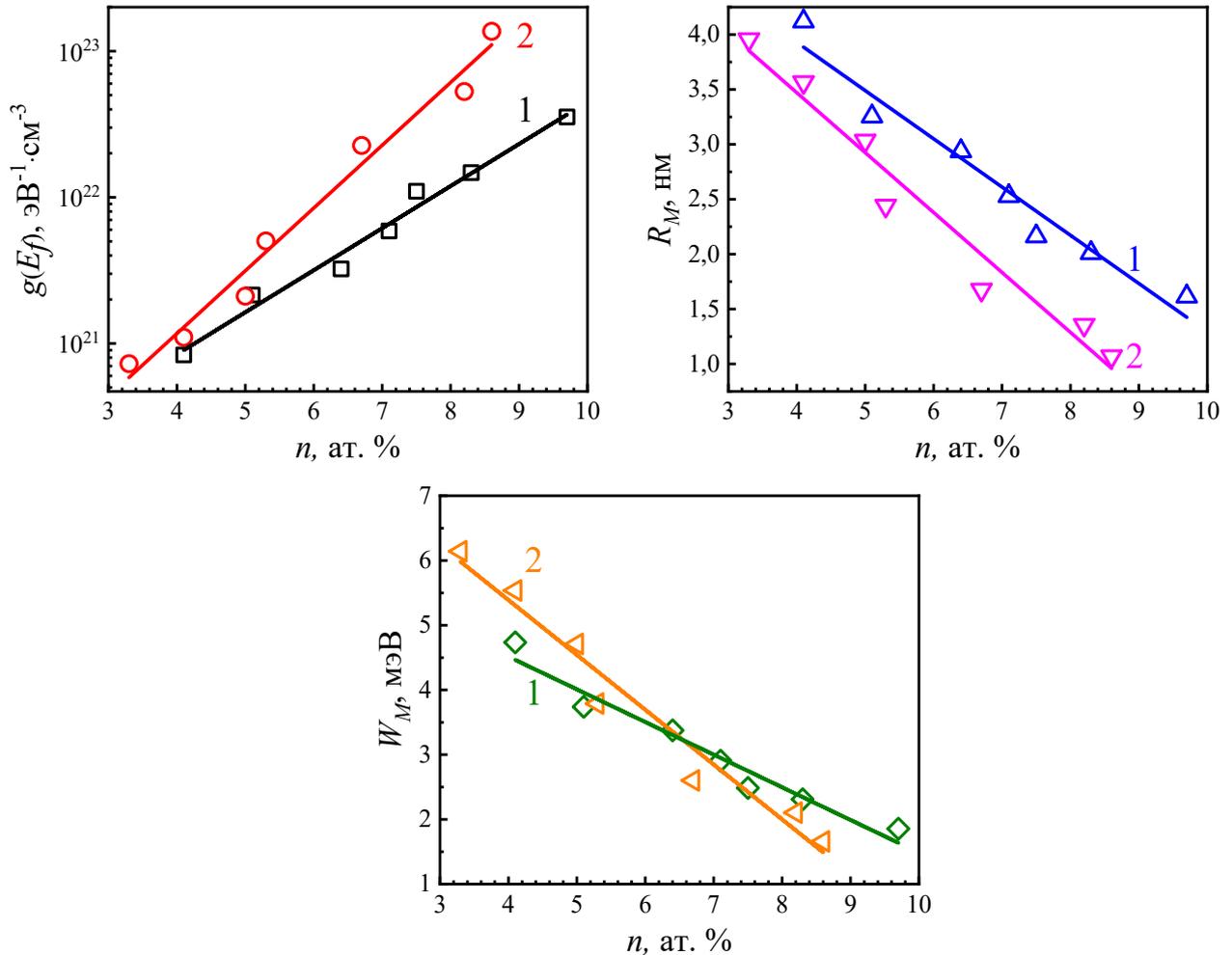


Рисунок 4.11 – Параметры, рассчитанные согласно модели ПППДП типа Мотта для нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных в Ar (1) и Ar + O₂ (2), в зависимости от содержания металлического кобальта в ат. %

Из оценок параметров ПППДП типа Мотта, приводимых на рисунке 4.9 следует, что увеличение концентрации металлической фазы Co приводит к увеличению плотности локализованных состояний вблизи уровня Ферми и уменьшению средней длины прыжка.

Для многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} \leq 0,8$ нм (до ПП), ρ с ростом температуры также уменьшалось (рисунок 4.12а), а для гетероструктур с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} \geq 0,8$ нм температурный коэффициент был положительным (рисунок 4.12б), как это имеет место в металлах.

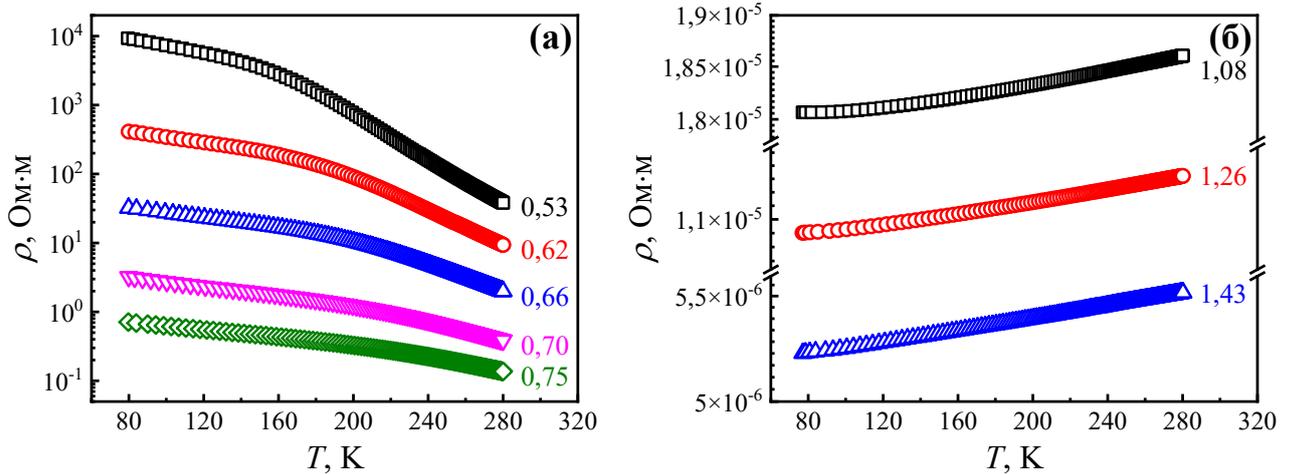


Рисунок 4.12 – Температурные зависимости ρ многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ (а) до ПП, (б) за ПП. Цифрами у кривых показаны значения (нм) эквивалентной толщины h_{Co}

Анализ данных рисунка 4.12а показал, что в области температур 80 – 140 К ρ аппроксимируется прямой линией в координатах $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/4})$ (рисунок 4.13), что указывает на ПППДП типа Мотта.

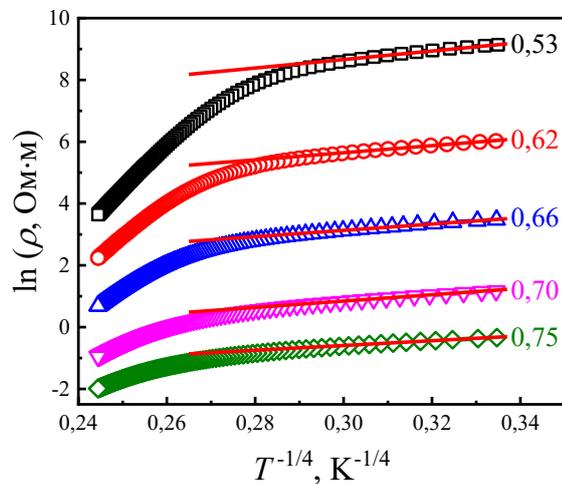


Рисунок 4.13 – Температурные зависимости ρ многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, представленные в координатах $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/4})$. Цифрами у кривых показаны значения (нм) эквивалентной толщины h_{Co}

Из рисунка 4.13 были определены значения параметра T_{0M} для исследованных составов пленок. Зная T_{0M} и предполагая, что процесс переноса носителей за-

ряда для гетероструктур до ПП лимитируется прыжками между нанокристалликами Co в островковых слоях в сплошной матрице CoO, проведем оценки плотности локализованных состояний. Радиус локализации примем равным размеру кристаллитов Co, которые в нашем случае пропорциональны средней эквивалентной толщине h_{Co} и равны $\approx 0,8$ нм. Результаты оценок приведены на рисунке 4.14.

Проведем также оценки средней энергии прыжка, которая в случае прыжков с переменной длиной прыжка должна быть равна (4.10) и средней длины прыжков носителей заряда при температуре $T = 100$ К по формуле (4.11).

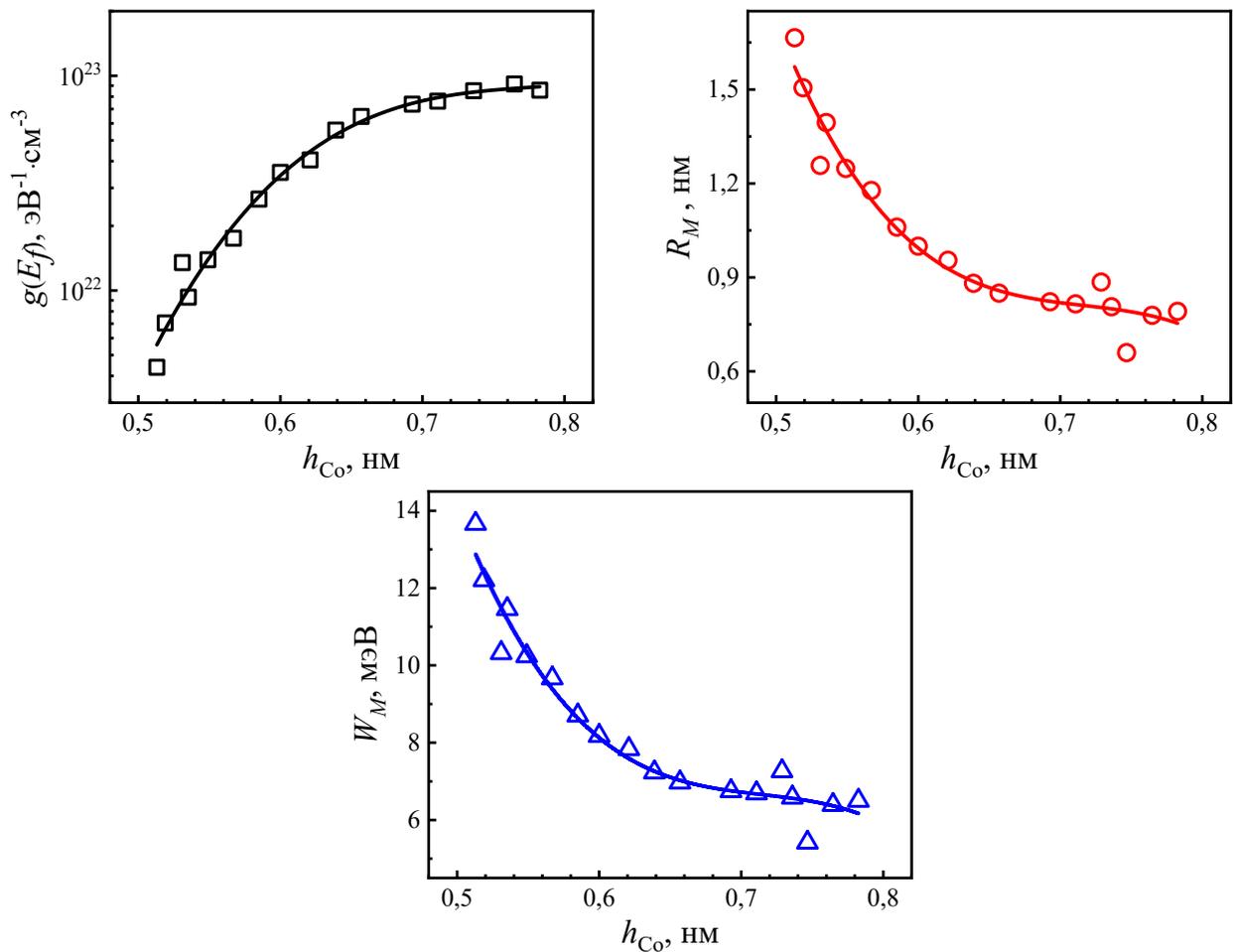


Рисунок 4.14 – Параметры, рассчитанные согласно модели ПППДП типа Мотта для многослойных гетероструктур (Co/CoO)₆₀, в зависимости от эквивалентной толщины h_{Co}

Отличительной чертой всех полученных зависимостей является насыщение при приближении значения эквивалентной толщины h_{Co} к ПП. Так, значения плотности локализованных состояний на уровне Ферми с ростом эквивалентной толщины h_{Co} стремится к значению $g(E_f) \approx 10^{23} \text{ эВ}^{-1} \cdot \text{см}^{-3}$, характерному для металлического кобальта [150].

Температурные зависимости ρ многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, с различной толщиной h_{ZnO} представлена на рисунке 4.15а. Анализ полученных результатов показал, что в исследованном температурном интервале ρ аппроксимируется прямой линией в координатах $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/4})$ (рисунок 4.16б), что указывает на возможность реализации ПППДП типа Мотта [141].

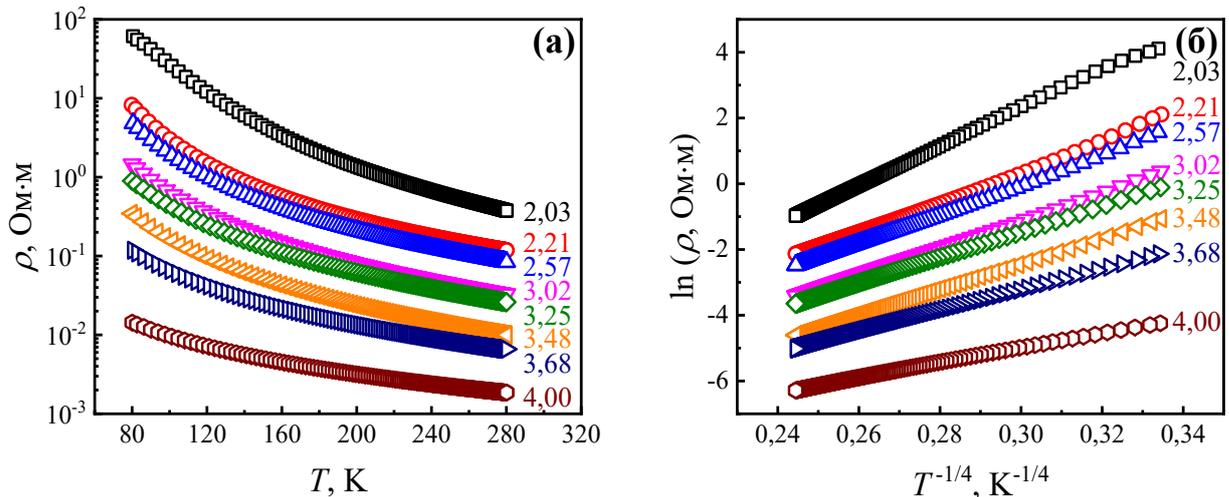


Рисунок 4.15 – Температурные зависимости ρ многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, представленные в координатах $\rho \propto f(T)$ (а) и $\ln(\rho) \propto f(T^{-1/4})$ (б). Цифрами у кривых показаны значения (нм) эквивалентной толщины h_{ZnO}

Из рисунка 4.15б были определены значения величин T_{0M} для исследованных составов пленок. Зная T_{0M} , и предполагая, что процесс переноса носителей заряда лимитируется прыжками между металлическими гранулами CoFeB, для оценки плотности локализованных состояний принимаем радиус локализации равным

среднему размеру гранулы в нанокompозите (≈ 2 нм), что соответствует толщине прослоек нанокompозита в многослойных гетероструктурах.

Проведем также оценку энергии прыжка носителей заряда при температуре 100 К по формуле (4.10) и оценку средней длины прыжка, которая для случая моттовской проводимости должна быть равна (4.11). Оценки плотности состояний, средней длины и энергии прыжка, проведенные в соответствии с формулами (4.9) – (4.11) представлены на рисунке 4.16.

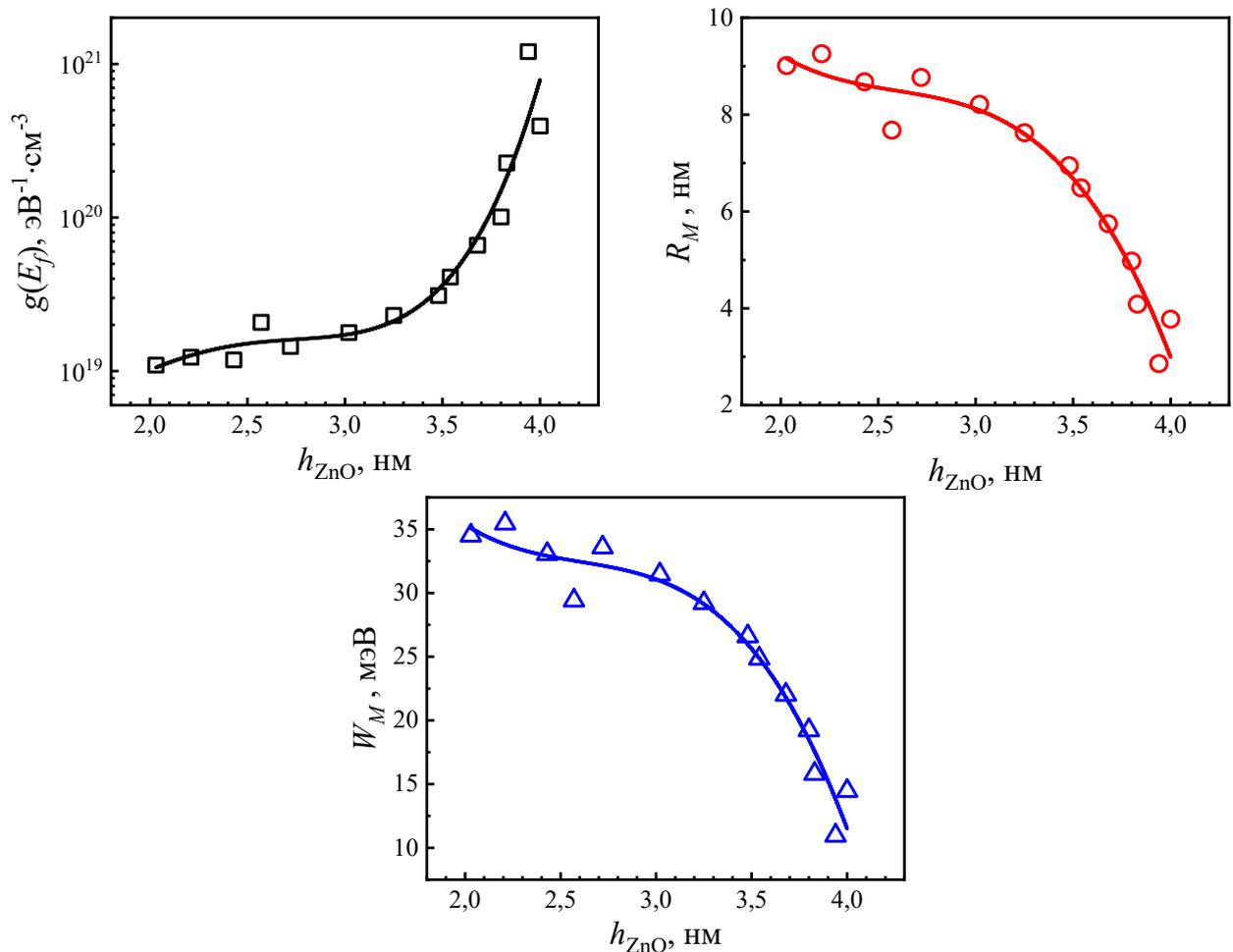


Рисунок 4.16 – Параметры, рассчитанные согласно модели ПППДП типа Мотта для многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ от эквивалентной толщины h_{ZnO}

Как видно из рисунка 4.16 энергия и средняя длина прыжка носителей заряда с увеличением толщины h_{ZnO} снижаются, а плотность электронных состояний не-

линейно увеличивается. Указанные выше особенности электропереноса в многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, можно объяснить, если предположить, что проводимость осуществляется главным образом прослойками ZnO. Как известно, главным источником локализованных состояний в оксидных полупроводниках и диэлектриках, полученных методами напыления в вакууме, являются вакансии по кислороду. В то же время, учитывая особенности методики синтеза исследуемых многослойных гетероструктур, следует признать, что при перемещении подложкодержателя от одной позиции осаждения (например, ZnO) к другой (нанокомпозит) происходит поверхностное окисление свеженанесенного слоя кислородом остаточных газов. Поскольку коэффициент диффузии кислорода в оксиде кремния, составляющем матрицу нанокомпозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$, значительно меньше, чем в ZnO [151], то кислород остаточных газов проникает главным образом в ZnO.

При малых толщинах прослойки ZnO могут окисляться на всю толщину, причем, чем тоньше прослойки, тем больше кислорода они содержат, а, следовательно, плотность состояний в таких прослойках ниже и слабо зависит от толщины. При больших толщинах прослоек ZnO окислен лишь приповерхностный слой прослоек, а «неокисленный» слой содержит максимальное для данных условий количество вакансий по кислороду. С дальнейшим ростом толщины прослоек ZnO толщина «доокисленного» слоя практически не изменяется, а «неокисленного» — растет, что приводит к электропереносу по «неокисленной» области прослоек ZnO и приводит к резкому увеличению эффективной плотности состояний.

Таким образом, приведенные на рисунке 4.16 оценки плотности локализованных состояний являются усредненными по каналу электропереноса в прослойках ZnO, а нарушение условий квантовой интерференции волновых функций, наблюдаемой для референтных пленок ZnO (рисунок 4.21), может быть следствием дополнительного окисления или размерного эффекта в силу малых толщин прослоек. Следует отметить, что нельзя также отрицать наличие электропереноса по прослойкам нанокомпозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$, и механизма, связанного с ними, что

также может приводить к нелинейной зависимости плотности локализованных состояний от толщины прослоек ZnO.

Следует отметить, что ПППДП типа Мотта не был обнаружен в референтных пленках нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ и ZnO.

4.2.4 Прыжковая проводимость по ближайшим соседям

Температурные зависимости ρ нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ до ПП в диапазоне температур 140 – 280 К подчиняются аррениусовской зависимости $\ln(\rho) \propto f(1/T)$ (рисунок 4.17).

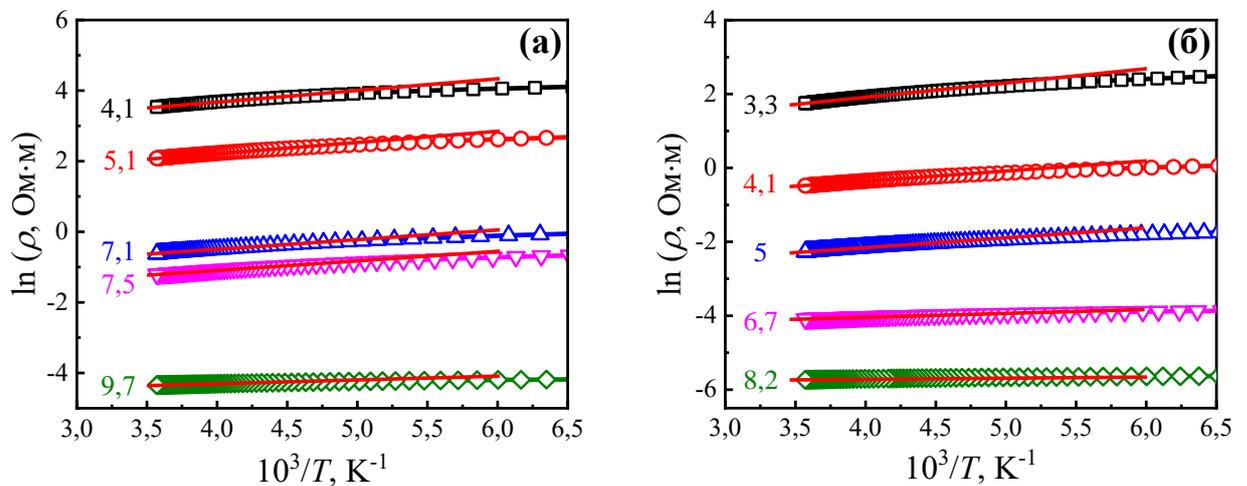


Рисунок 4.17 – Температурные зависимости ρ нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, представленные в координатах $\ln(\rho) \propto f(1/T)$, полученных в Ar (а) и Ar + O₂ (б).

Цифрами у кривых показано содержание металлического кобальта в ат. %

Если рассматривать обозначенный температурный интервал как область реализации ППБС, тогда, согласно [141] для проводимости должно быть справедливо равенство (4.12):

$$\sigma = \sigma_0 \cdot \exp\left(\frac{W_{NNH}}{k_B T}\right), \quad (4.12)$$

где W_{NNH} – энергия активации прыжка, задаваемая для прыжков по ближайшим соседям выражением (4.13):

$$W_{\text{NNH}} = \frac{3}{4\pi R_0^3 g(E_f)}, \text{ тогда } R_0 = \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi W_{\text{NNH}} g(E_f)}} \quad (4.13)$$

где R_0 – среднее расстояние между ближайшими соседями;
 $g(E_f)$ – плотность состояний на уровне Ферми.

Используя формулы (4.12) и (4.13), из рисунка 4.17 оценим значения энергии активации прыжка.

Поскольку проводимость с переменной длиной прыжка по локализованным состояниям на уровне Ферми, установленная ранее, и проводимость по ближайшим соседям должны проходить внутри одной и той же узкой полосы энергий, и если считать, что плотность локализованных состояний слабо зависит от температуры, то из данных рисунка 4.10 и формулы (4.13) можно произвести оценку среднего расстояния между ближайшими соседями R_0 (рисунок 4.18).

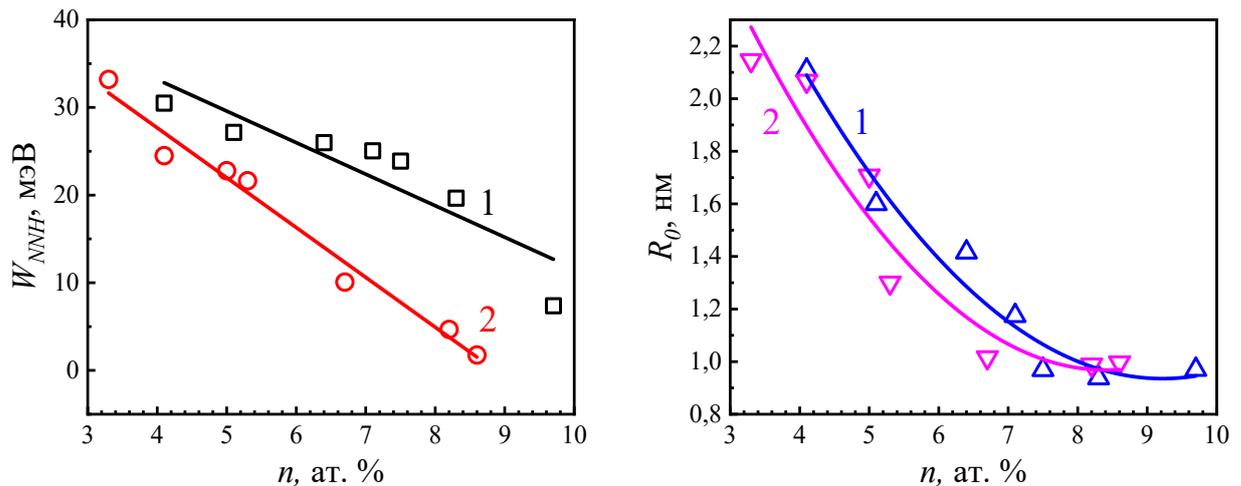


Рисунок 4.18 – Параметры, рассчитанные согласно модели ППБС для нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных в Ar (1) и Ar + O_2 (2), в зависимости от содержания металлического кобальта в ат. %

Сравнение данных рисунка 4.11 и 4.18 приводит к следующим выводам:

1. Средняя длина прыжка при ППДП согласуется с расстоянием между ближайшими соседями, рассчитанным для ППБС.
2. Значения энергий активации прыжка увеличивается при переходе от ППДП к ППБС.

Кроме того, если считать, что при прыжках по ближайшим соседям ширина зоны локализованных состояний, лежащих около уровня Ферми, приблизительно равна удвоенной энергии активации прыжка, то из рисунка 4.18 следует, что с увеличением содержания Co ширина этой зоны уменьшается.

Анализ данных многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ рисунка 4.12а показал, что ρ в области температур 140 – 280 К аппроксимируется прямой линией в координатах $\ln(\rho) \propto f(1/T)$ (рисунок 4.19), что указывает на ППБС.

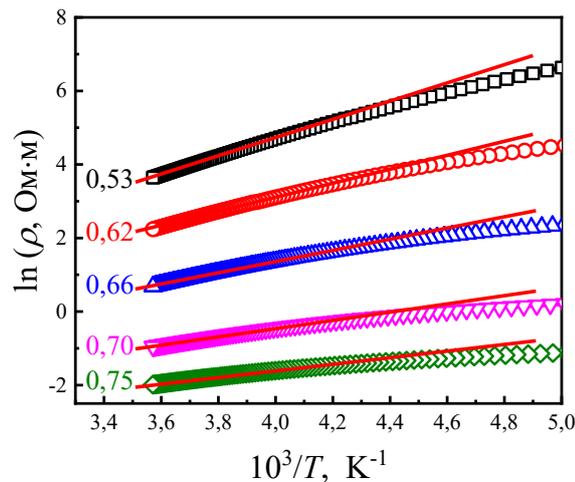


Рисунок 4.19 – Температурные зависимости ρ многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, представленные в координатах $\ln(\rho) \propto f(1/T)$. Цифрами у кривых показаны значения (нм) эквивалентной толщины h_{Co}

Если рассматривать обозначенный температурный интервал как область реализации ППБС, тогда, согласно [141] используя формулы (4.12) и (4.13), из рисунка 4.19 оценим значения среднее расстояние между ближайшими соседями, энергии активации прыжка, полученные результаты представлены на рисунке 4.20.

Следует отметить, что приведенные на рисунках 4.14 и 4.20 оценки параметров прыжкового электропереноса носят исключительно качественный характер, так как не учитывают морфологических особенностей электропереноса, в частности многослойность изучаемых структур, а примененные формулы справедливы лишь для гомогенных веществ.

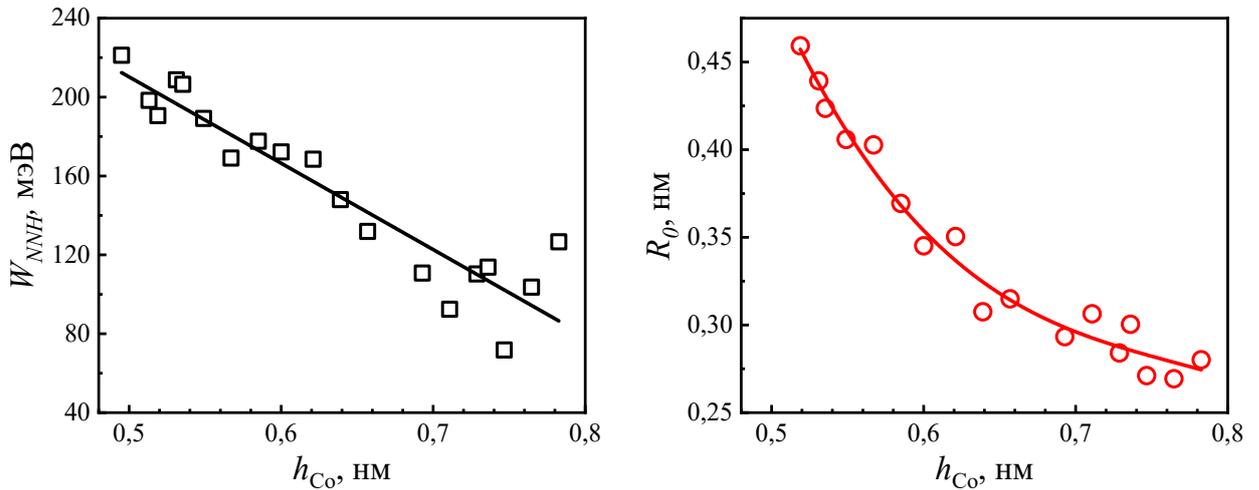


Рисунок 4.20 – Параметры, рассчитанные согласно модели ППБС для многослойных гетероструктур $(Co/CoO)_{60}$, в зависимости от эквивалентной толщины h_{Co}

Тем не менее, из представленных на рисунках 4.14 и 4.20 оценок параметров ПППДП типа Мотта, следует, что увеличение эквивалентной толщины h_{Co} приводит к увеличению плотности локализованных состояний вблизи уровня Ферми и уменьшению энергии и средней длины прыжка. При переходе к ППБС энергия активации прыжка увеличивается, а средний радиус прыжка – уменьшается для всех гетероструктур с эквивалентной толщиной h_{Co} до ПП.

4.2.5 Слабая локализация

Анализ зависимостей ρ референтных пленок ZnO разной толщины (рисунок 4.21а), которые затем были перестроены в координатах $\ln(\rho) \propto f(T^{-n})$, где n принимали значения 1/4, 1/3, 1/2, 1 не дал положительного результата, однако удовлетворительную линеаризацию можно получить если перестроить полученные зависимости в координатах $\rho \propto f(\ln(T))$ (рисунок 4.21б).

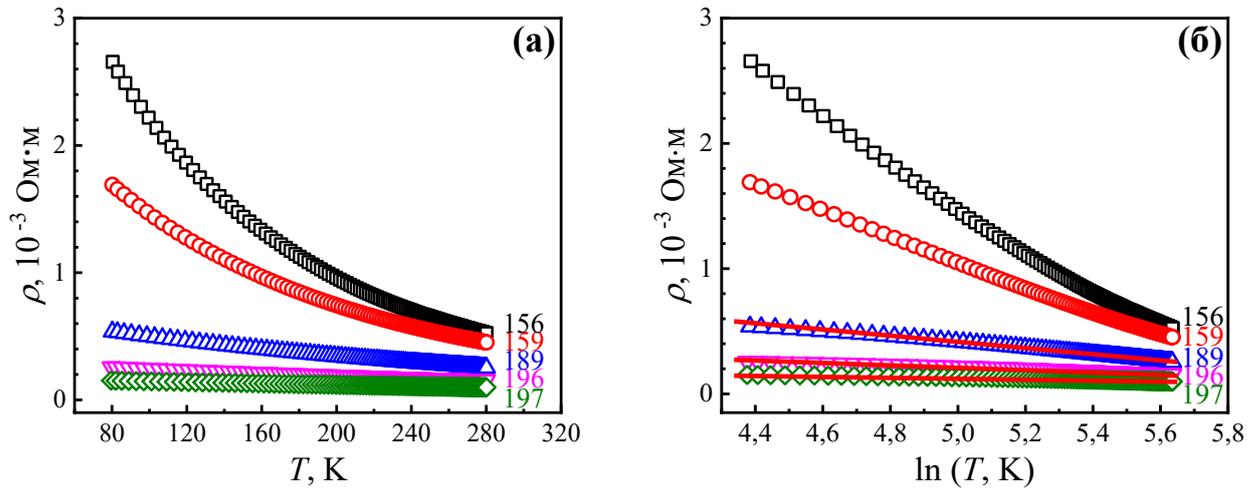


Рисунок 4.21 – Температурные зависимости ρ пленок ZnO разной толщины (указаны рядом с кривыми в нм), представленные в координатах $\rho \propto f(\ln(T))$

В этом случае отрицательный температурный коэффициент ρ может быть связан с наличием слабой локализации носителей заряда, когда уменьшение ρ связывают с квантовой интерференцией волновых функций невзаимодействующих электронов и возрастанием роли межэлектронного взаимодействия [152].

В многослойных гетероструктурах $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ в области $h \geq 150$ нм в пленках формируется слоистая структура из слоев ZnO и квазисплошных аморфных слоев углерода (рисунок 4.22).

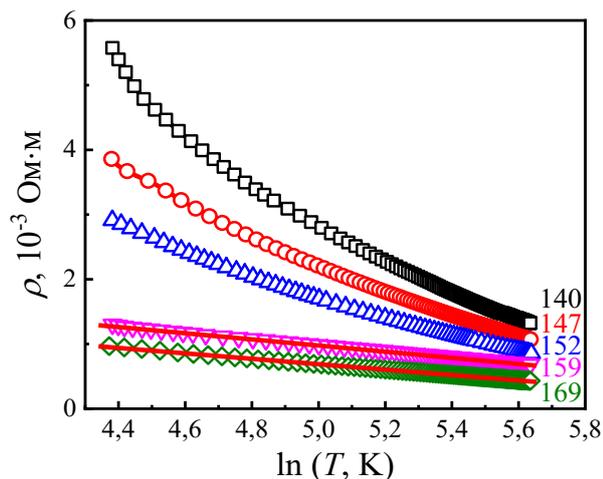


Рисунок 4.22 – Температурные зависимости ρ многослойных гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ разной толщины (указаны рядом с кривыми в нм), представленные в координатах $\rho \propto f(\ln(T))$

В этом случае можно предположить, что основным каналом проводимости будут выступать прослойки углерода, по мере роста толщины которых будет происходить переход от сильной локализации к состоянию так называемой слабой локализации [140], что должно сопровождаться сменой механизма проводимости.

ГЛАВА 5 МАГНИТОРЕЗИСТИВНЫЕ ЯВЛЕНИЯ В ГЕТЕРОГЕННЫХ СИСТЕМАХ

В течение последних десятилетий было установлено, что в гетерогенных структурах относительное МС, может достигать десятков, сотен и даже десятков тысяч (!) процентов в сильных магнитных полях. Значения МС в новых материалах настолько велики, что были специально введены термины «гигантское магнитосопротивление» (ГМС) и «колоссальное магнитосопротивление» (КМС). Совершенно очевидно, что механизмы, обуславливающие возникновения ГМС и КМС иные, нежели в простых проводниках, и значительно более сложные. В зависимости от типа материала МС связано либо с рассеянием поляризованных носителей заряда (электронов) на структурных неоднородностях проводника, либо с туннелированием поляризованных электронов через непроводящие участки композита, либо с изменением проводящих свойств всего материала (переход металл–изолятор).

Все эти гетерогенные системы, а также механизмы, отвечающие за появление МС, активно исследуются в настоящее время, поскольку МС чрезвычайно привлекательно для практического использования и интерес к изучению этого явления подогревается постоянно возникающими новыми вариантами применения МС в технике. В настоящей главе приводятся новые экспериментальные результаты в исследованных гетероструктурах.

5.1 Спин-зависимое туннелирование в гетероструктурах Co-CoO

На рисунке 5.1а и 5.1б представлены полевые зависимости МС нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных распылением составной мишени в атмосфере Ar. Отрицательное МС наблюдается для нанокompозитов до и после ПП, но величина МС значительно снижается по мере перехода к металлическому режиму. При ориентации магнитного поля в плоскости пленки (рисунок 5.1б) МС, измеренное в максимальном поле 9 кЭ, меньше, чем, когда поле перпендикулярно плоскости тока

[153]. Вероятно, это связано не столько с влиянием анизотропии МС, сколько с влиянием фактора размагничивания (фактора формы образца). Это коррелирует с результатами измерений магнитной намагниченности в тех же условиях (рисунок 5.1в и 5.1г). Действительно, в зависимости от геометрии измерения ($H \perp$ пл или $H \parallel$ пл) полевые кривые намагничивания различаются. При этом петли гистерезиса наблюдаются для всех исследованных нанокomпозитов, причем ширина петли гистерезиса для всех составов больше при измерении перпендикулярно плоскости пленки (рисунок 5.1в), чем для кривых, измеренных в плоскости пленки (рисунок 5.1г).

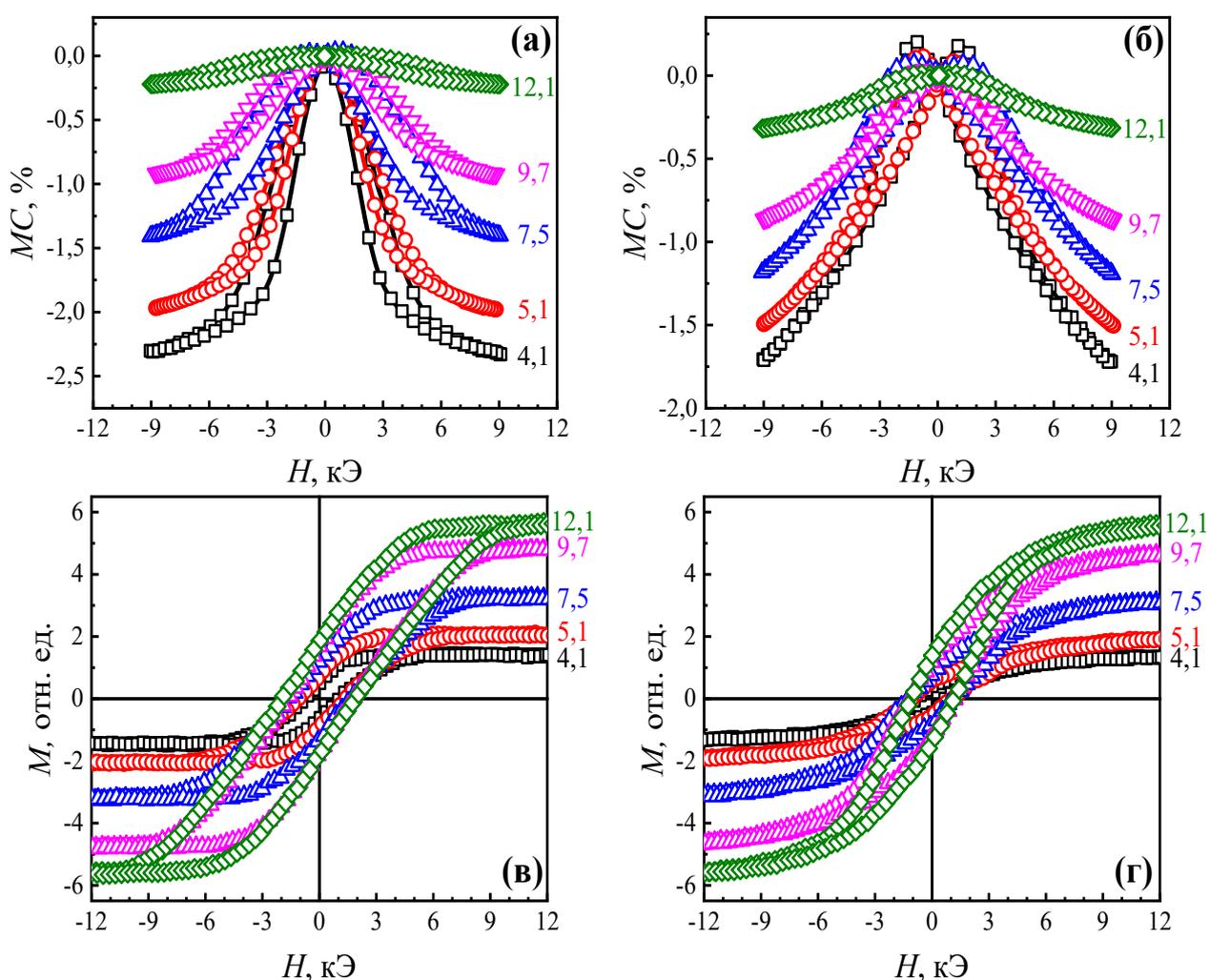


Рисунок 5.1 – Полевые зависимости МС (а,б) и намагниченности (в,г) нанокomпозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных в Аг, измеренные при 300 К: ($H \perp$ пл, $H \perp I$) (а,в) ($H \parallel$ пл, $H \parallel I$) (б,г). Цифрами у кривых показано содержание металлического кобальта в ат. %

На рисунке 5.2 показаны полевые зависимости МС для трех различных геометрий относительно взаимной ориентации магнитного поля, электрического тока и плоскости для нанокompозита $\text{Co}_{0,7}(\text{CoO})_{0,3}$. Кривые 2 и 3, измеренные для ориентации магнитного поля в плоскости пленки, практически совпадают, что подтверждает изотропность МС, по крайней мере, для составов вблизи ПП со стороны диэлектрика.

Результаты измерений МС и данные по намагниченности нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных в атмосфере $\text{Ar} + \text{O}_2$, представлены на рисунке 5.3. Сравнивая полученные значения с результатами, представленными на рисунке 5.1, можно сделать вывод, что добавка O_2 приводит к снижению МС полученных нанокompозитов при одинаковом содержании металлической фазы, что связано с различной микроструктурой нанокompозитов.

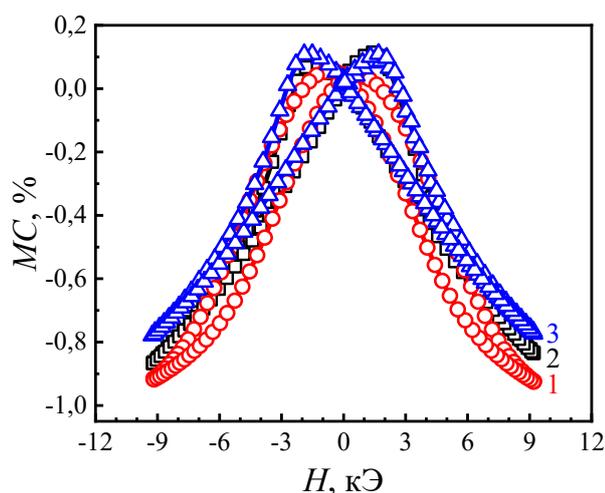


Рисунок 5.2 – Полевые зависимости МС нанокompозита $\text{Co}_{0,7}(\text{CoO})_{0,3}$, полученного в Ar : 1 – ($\mathbf{H} \perp \text{пл}, \mathbf{H} \perp \mathbf{I}$), 2 – ($\mathbf{H} \parallel \text{пл}, \mathbf{H} \parallel \mathbf{I}$), 3 – ($\mathbf{H} \parallel \text{пл}, \mathbf{H} \perp \mathbf{I}$)

Наличие отрицательного МС вблизи ПП характерно для нанокompозитов металл–диэлектрик и связано со спин-зависимым туннелированием [106,154–157]. Согласно простой теории туннельного МС Иноуэ-Маекавы [106] для нанокompозита, состоящего из однодоменных магнитных частиц, распределенных в матрице диэлектрика, МС описывается соотношением (5.1):

$$MC = - [P^2(I/I_S)^2]/[1+P^2(I/I_S)^2], \quad (5.1)$$

где I/I_S – относительная намагниченность;

P – спиновая поляризация носителей заряд.

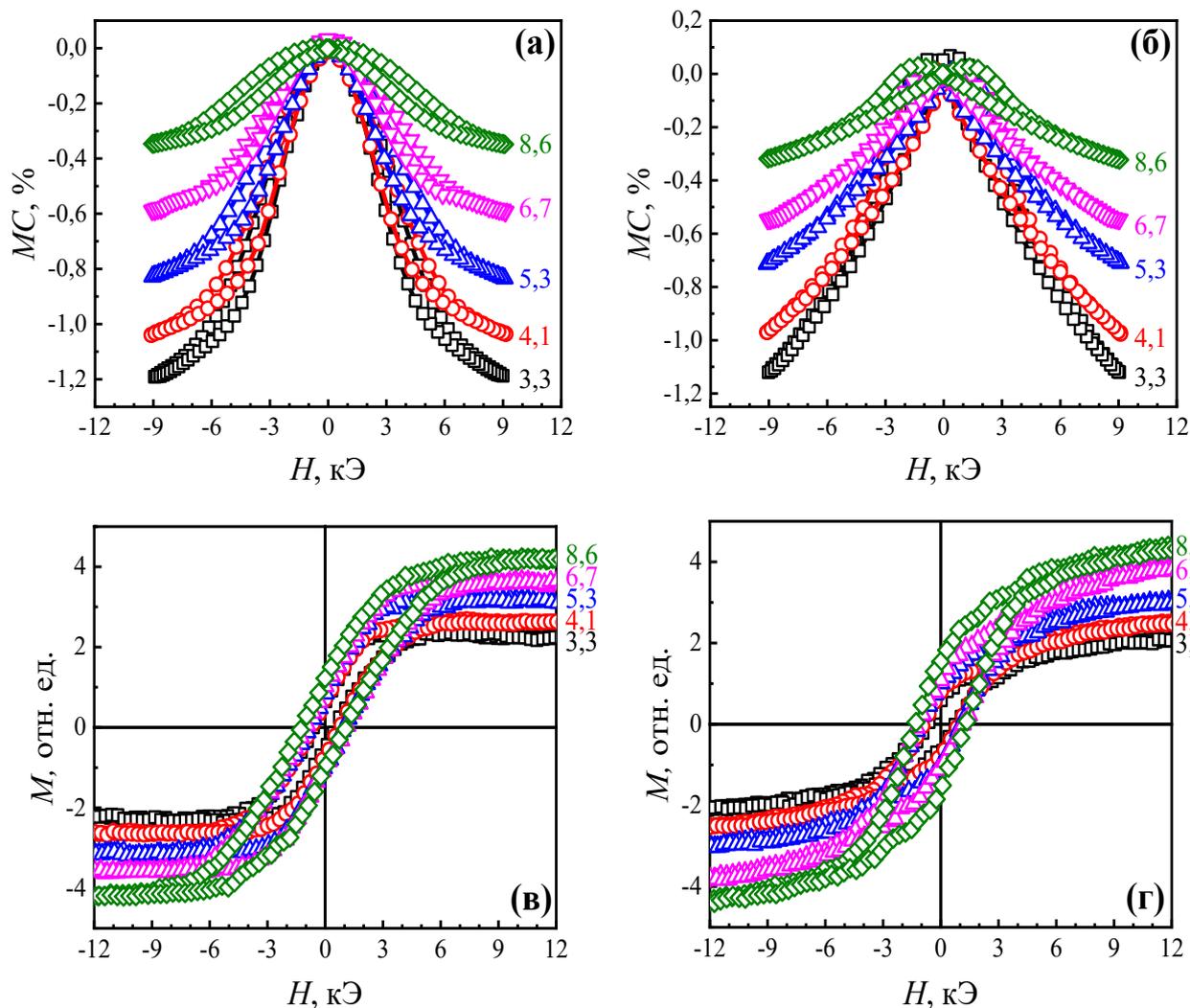


Рисунок 5.3 – Полевые зависимости МС (а,б) и намагниченности (в,г) нанокomпозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$, полученных в $Ar + O_2$, измеренные при 300 К: ($H \perp$ пл, $H \perp$ I) (а,в) ($H \parallel$ пл, $H \parallel$ I) (б,г). Цифрами у кривых показано содержание металлического кобальта в ат. %

При малых значениях спиновой поляризации МС (5.2) пропорционально квадрату относительной намагниченности [106,156]:

$$MC \approx - P^2(I/I_S)^2, \quad (5.2)$$

что действительно соответствует экспериментально наблюдаемым результатам (рисунок 5.4). Теория Иноуэ-Маекавы применима к упругим туннельным процессам, т.е. при низких температурах не учитывает процессы спин-флип или морфологию нанокompозитов. Поэтому это не позволяет оценить степень спиновой поляризации по измерениям при комнатной температуре. Полученное значение МС, достигающее 2,3 % в поле 9 кЭ, находится по порядку величины на уровне высоких значений туннельного МС в нанокompозитах при комнатной температуре [156–158].

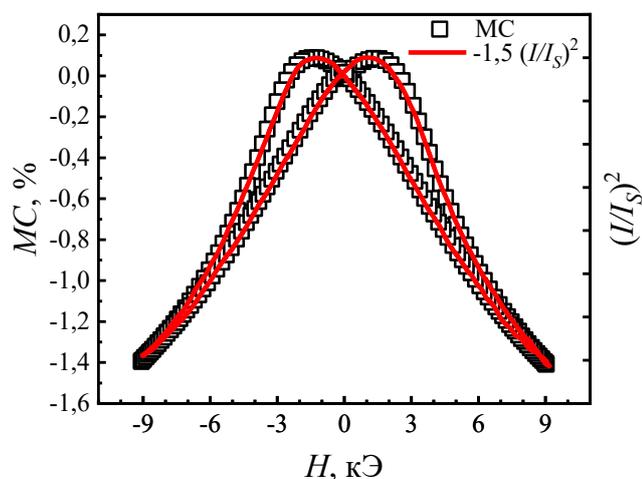


Рисунок 5.4 – Зависимости МС и нормированного квадрата приведенной намагниченности нанокompозита $\text{Co}_{7,5}(\text{CoO})_{92,5}$, полученного в Ag и измеренные при 300 К: ($H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$)

В то же время обнаружен нетипичный для нанокompозитов гистерезис МС при комнатной температуре (рисунок 5.1 – 5.3) [159]. Он проявляется в тонких пленках вплоть до ПП и заключается в несовпадении зависимостей, измеренных при увеличении и при уменьшении напряженности магнитного поля. Гистерезис МС, очевидно, является следствием магнитного гистерезиса (рисунок 5.1 и 5.3).

Для нанокompозита со столь низкой концентрацией ферромагнитных наночастиц появление магнитного гистерезиса при комнатной температуре парадоксально. Действительно, для ансамбля слабо взаимодействующих суперпарамагнитных частиц магнитный гистерезис должен отсутствовать. Следует отметить, что для наночастиц кобальта, будь то кобальт в гексагональной модификации или, тем

более, в кубическом состоянии, как это имеет место в исследованных нанокompозитах, температура блокировки значительно ниже комнатной температуры [156].

Рассмотрим возможные причины такого поведения. Во-первых, чтобы исключить возможность паразитного эффекта, связанного с образованием достаточно крупных ферромагнитных областей кобальта из-за возможной неоднородности состава, были проведены магнитооптические спектральные измерения. Показано отсутствие кластеров кобальта, поскольку спектры не имеют подобных особенностей. Во-вторых, корреляция между МС и намагниченностью указывает на то, что это коллективный эффект, т.е. магнитный гистерезис не связан с перемагничиванием одной или нескольких крупных, одно- или многодоменных частиц. В-третьих, большое значение коэрцитивной силы (0,7 кЭ) исключает ферромагнитное состояние ансамбля взаимодействующих суперпарамагнитных частиц [157], характеризующееся магнитной мягкостью при чрезвычайно низкой коэрцитивной силе. Таким образом, мы приходим к выводу, что появление магнитного гистерезиса связано с двумя факторами. Во-первых, это особенность морфологии нанокompозита, где наночастицы Со располагаются на поверхности более крупных частиц СоО, что усиливает взаимодействие между ними и способствует образованию сильно вытянутых ферромагнитных цепочек с большой магнитной анизотропией. Второе – возможное усиление магнитной анизотропии кристаллов вблизи границы раздела Со/СоО (эффект магнитной близости). Последнее возможно, например, за счет формирования на поверхности СоО тонкого антиферромагнитного при комнатной температуре слоя нестехиометрического состава. Увеличение магнитной анизотропии за счет этих двух факторов приводит к увеличению температуры блокировки, т.е. наночастицы Со становятся однодоменными, с характерно большими значениями коэрцитивной силы.

С понижением температуры до 77 К гистерезис на зависимостях МС нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ увеличивается. Величина МС, измеренная в поле напряженностью 9 кЭ нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ уменьшается независимо от взаимной ориентации магнитного поля, тока и плоскости образца (рисунок 5.5).

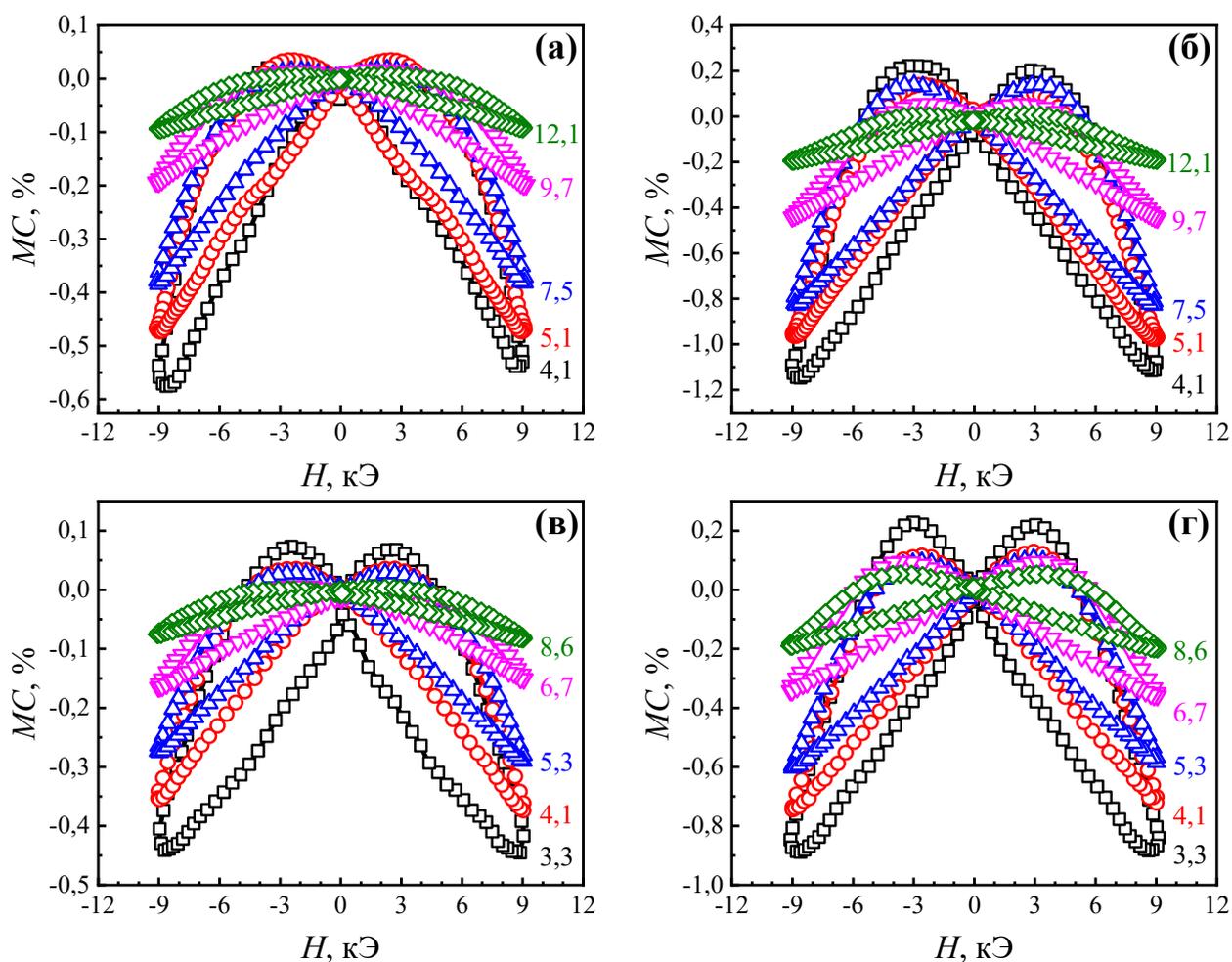


Рисунок 5.5 – Полевые зависимости МС нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, полученных в Ar (а,б) и Ar + O_2 (в,г), измеренные при 77 К:

($H \perp \text{пл}$, $H \perp I$) (а,в) ($H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$) (б,г).

Принимая во внимание тот факт, что ρ оксида кобальта достаточно высоко ($10^8 - 10^{15}$ Ом·см), и полагая, что отрицательное МС в образцах до ПП связано со спин-зависимым туннелированием [160], можно сделать вывод, что при охлаждении ниже температуры Нееля антиферромагнитного CoO (для чистого CoO $T_N = 291$ К) на границах Co-CoO формируется обменный закрепляющий слой, препятствующий повороту магнитных моментов гранул при температурах ниже T_N . Поскольку охлаждение проводится без приложения внешнего магнитного поля, магнитные моменты соседних гранул композитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ пиннингуются стохастически.

Таким образом, в отсутствие внешнего магнитного поля магнитные моменты соседних гранул не являются параллельными, что не способствует процессу спин-зависимого туннелированию, а наличие пиннирующего слоя препятствует их параллельной ориентации во внешнем поле. Вероятно, описанные выше процессы и приводят к уменьшению величины МС нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ при температурах ниже T_N (на рисунке 5.6 представлено обобщение величин МС нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$).

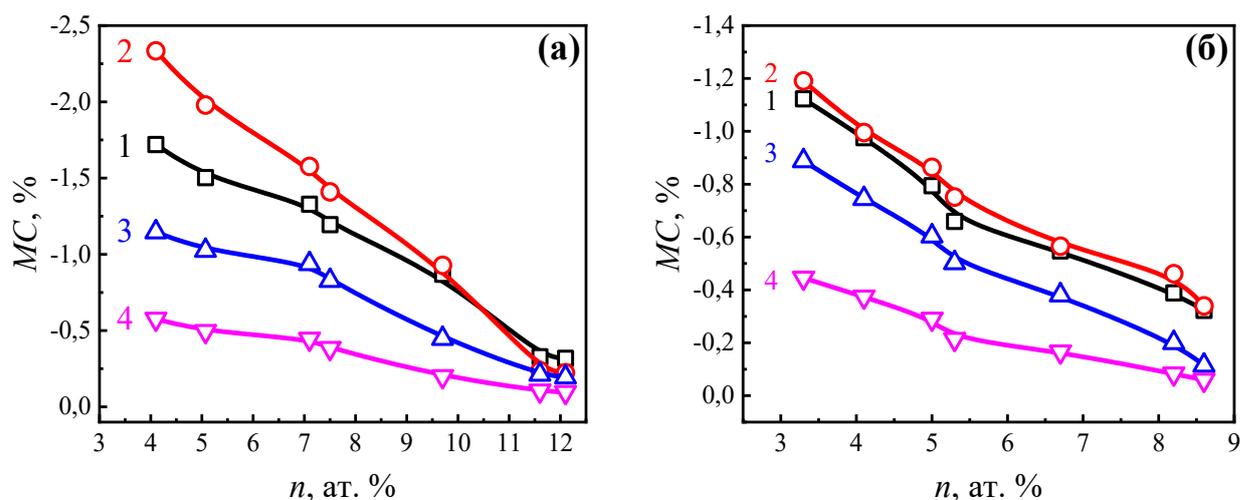


Рисунок 5.6 – Зависимости МС нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ от содержания металлического кобальта в ат. % полученных в Ar (а) и $\text{Ar} + \text{O}_2$ (б) и измеренные при температуре 300 К: ($\text{H} \parallel \text{пл}$, $\text{H} \parallel \text{I}$) (1) ($\text{H} \perp \text{пл}$, $\text{H} \perp \text{I}$) (2), при температуре 77 К: ($\text{H} \parallel \text{пл}$, $\text{H} \parallel \text{I}$) (3) ($\text{H} \perp \text{пл}$, $\text{H} \perp \text{I}$) (4)

На рисунке 5.7а представлена петля гистерезиса магнитооптического эффекта Керра (МОКЕ) многослойной гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} \approx 0,7$ нм, т.е. вблизи ПП. На вставке показана схема измерения при изменении угла θ между внешним магнитным полем и одной из сторон в плоскости гетероструктуры (вставка на рисунке 5.7а).

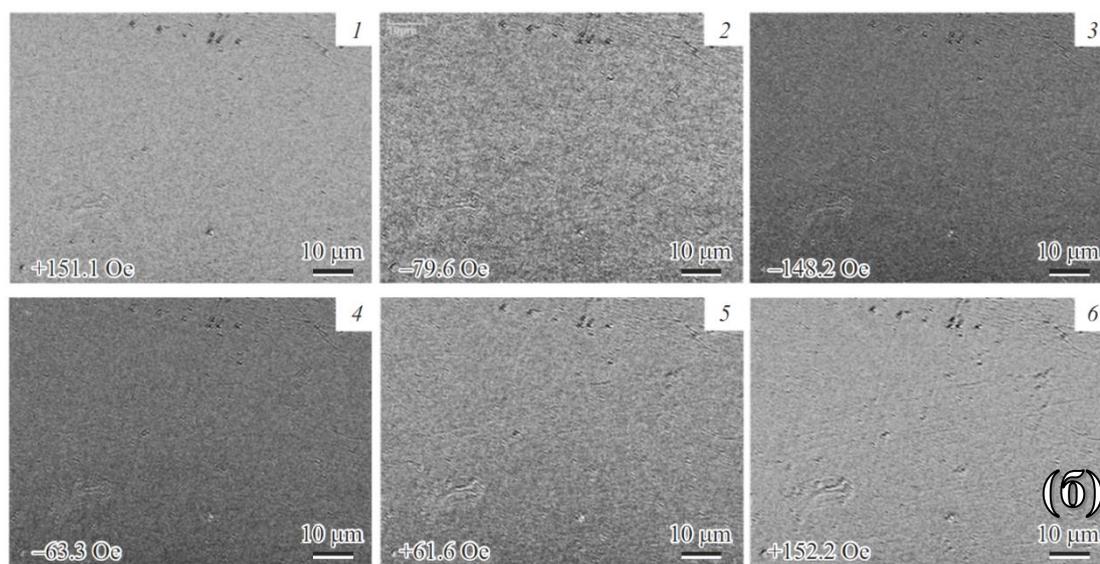
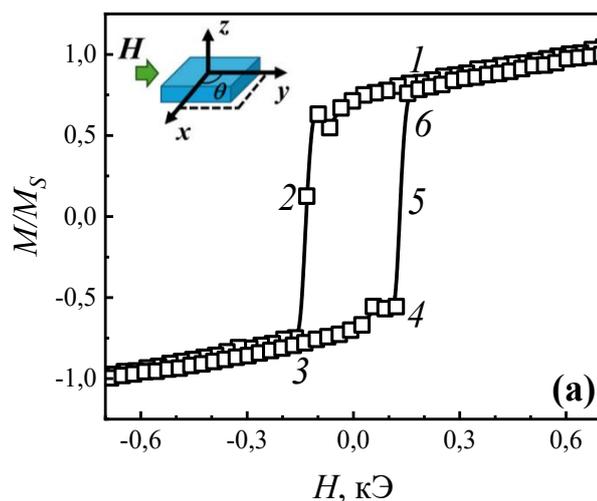


Рисунок 5.7 – Петля гистерезиса МОКЕ многослойной гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} \approx 0,7$ нм, т.е. вблизи ПП (а), на вставке представлена схема измерения при изменении угла θ между внешним магнитным полем и одной из сторон плоскости гетероструктуры. Фотографии доменов (б) в поляризованном свете микроскопа на основе эффекта Керра в магнитных полях

На рисунке 5.7б показаны фотографии доменов в поляризованном свете микроскопа на основе эффекта Керра в магнитных полях +151,1 (1), -79,6 (2), -148,2 (3), -63,3 (4), +61,6 (5) и +152,2 Ое (6).

Темные и светлые области соответствуют противоположным направлениям намагниченности, лежащей в плоскости пленки. Изменение магнитного поля вы-

зывает рост темного поля и подавление светлого в положительных полях и обратный процесс в отрицательных полях. Изменение направления намагниченности сопровождается распространением зародышей размерами $\approx 1 - 2$ мкм.

На рисунке 5.8 представлены петли гистерезиса МОКЕ этой же многослойной гетероструктуры при изменении θ от 0 до 90 градусов при комнатной температуре. Изучение магнитооптического эффекта Керра показало наличие магнитной анизотропии, при этом оси легкой (ОЛН) и трудной (ОТН) намагниченности находятся в плоскости пленки и перпендикулярны друг другу (рисунок 5.8).

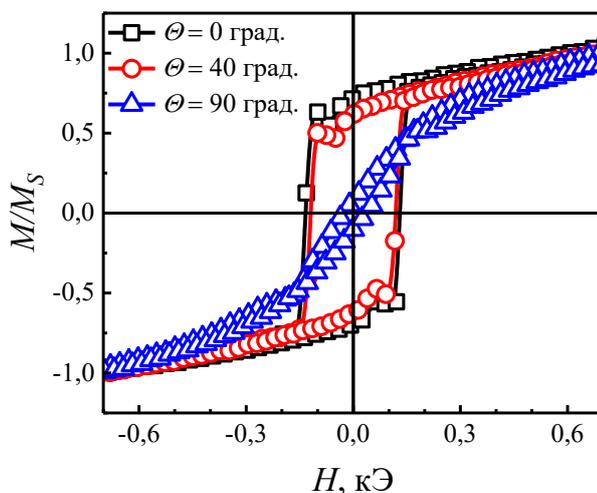


Рисунок 5.8 – Петли гистерезиса МОКЕ для многослойной гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} \approx 0,7$ нм, т.е. вблизи ПП при изменении угла θ между внешним магнитным полем и плоскостью гетероструктуры от 0 до 90 градусов при комнатной температуре. Внешнее магнитное поле лежит параллельно плоскости гетероструктуры

Поскольку метод МОКЕ позволяет с высокой скоростью записывать петли гистерезиса на локальной поверхности гетероструктуры, были выявлены скачки намагниченности (рисунок 5.8 при $\theta = 0^\circ$, $\theta = 40^\circ$), которые составляют $\Delta M \approx 0,2\%$. Главными необычными особенностями скачков являются их небольшая длительность ≈ 2 с. Это обстоятельство не позволяет стандартно автоматизировать регистрацию и математическую обработку скачков намагниченности. Возможными причинами появления скачка намагниченности могут являться конкуренция отдельных зародышей намагниченности островкового Co, либо отдельные

квазисостояния некоторых островковых кластеров Co в объеме многослойной гетероструктуры.

На рисунке 5.9 показаны кривые намагниченности для многослойной гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ до ПП, измеренные с помощью вибрационного магнитометра.

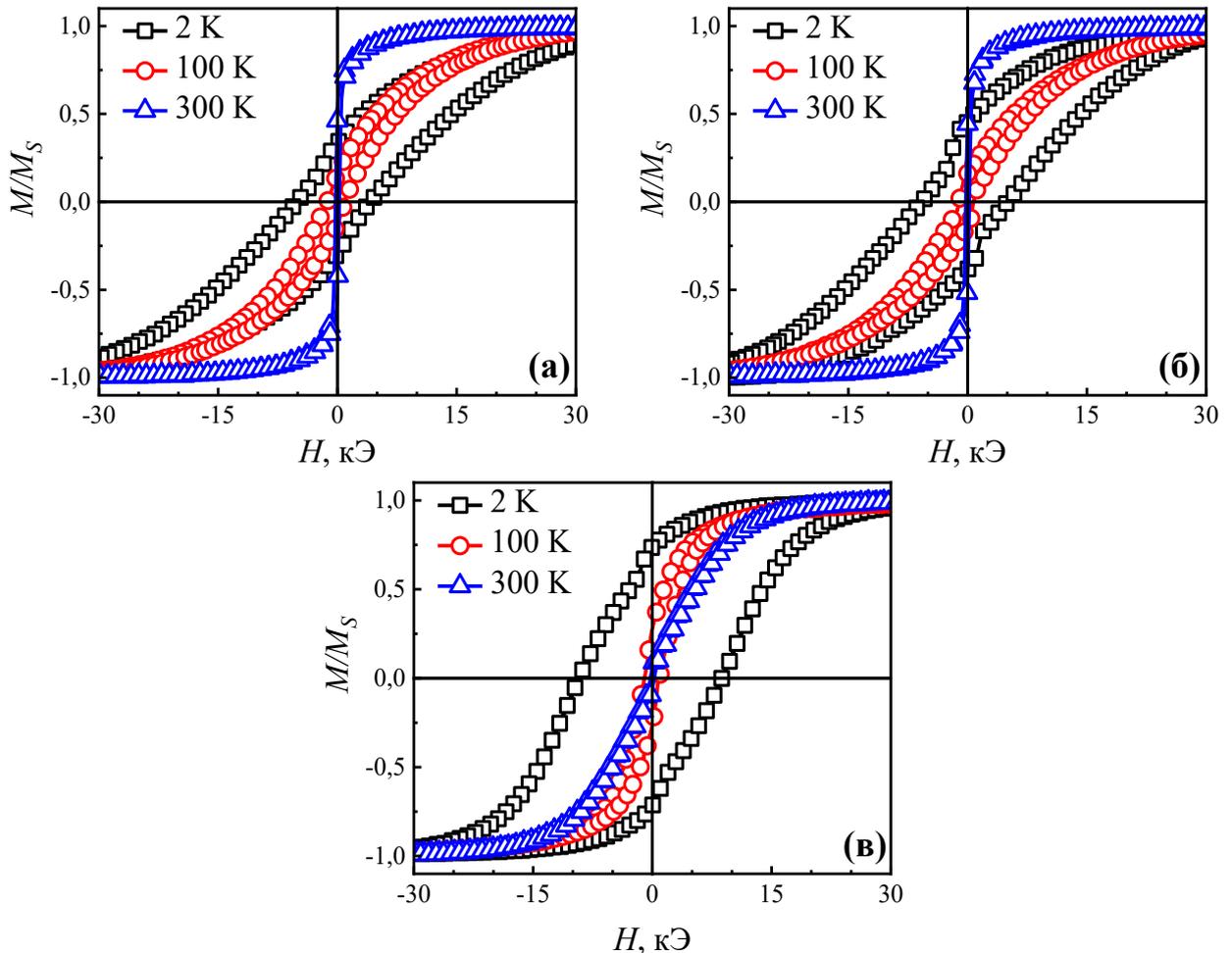


Рисунок 5.9 – Петли гистерезиса в диапазоне температур 2 – 300 К для многослойной гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} \approx 0,7$ нм, т.е. вблизи ПП. Внешнее магнитное поле направлено параллельно плоскости гетероструктуры при $\theta = 0$ град. (а), при $\theta = 90$ град. (б) и перпендикулярно плоскости гетероструктуры (в)

Петли гистерезиса гетероструктуры Co/CoO до ПП в диапазоне температур 2 – 300 К, измеренные с помощью вибрационного магнитометра, показали наличие

ферромагнетизма вплоть до $T = 100$ К и его отсутствие при более высоких температурах, что характерно для суперпарамагнитного состояния гетероструктуры, когда вместо многослойной структуры формируется нанокompозит Co-CoO с матрицей оксида кобальта и гранулами чистого кобальта.

Стоит отметить, что при регистрации петель гистерезисов вибрационным магнитометром никаких скачков намагниченности не было зарегистрировано, так как скорость записи этим методом намного меньше, чем у МОКЕ.

Для многослойной гетероструктуры (Co/CoO)₆₀ до и вблизи ПП не было зарегистрировано эффектов магнитной близости и обменного смещения. Поскольку экспериментальное наблюдение этих эффектов подразумевает охлаждение гетероструктур ниже температуры блокировки CoO в магнитном поле.

Анализ зависимостей электрического сопротивления многослойных гетероструктур (Co/CoO)₆₀ от напряженности внешнего магнитного поля при температуре 300 К показал, что в пленках до ПП (при эквивалентной толщине $h_{Co} < 0,8$ нм) MC отрицательно и изотропно, т.е. не зависит от взаимной ориентации магнитного поля, тока и плоскости пленки в диапазоне напряженности поля до 9 кЭ (рисунок 5.10).

Меньшие значения величины MC, измеренного при напряженности поля порядка 9 кЭ при ориентации магнитного поля перпендикулярно плоскости пленки ($H \perp$ пл рисунок 5.10а) в сравнении со случаем, когда магнитное поле было направлено вдоль плоскости пленки ($H \parallel$ пл рисунок 5.10б), связано с влиянием размагничивающего фактора.

С понижением температуры на полевых зависимостях запороговых гетероструктурах (Co/CoO)₆₀, появляются участки положительного MC (ПМС), характеризующиеся наличием максимума в области полей порядка 3 кЭ, которое также является изотропным.

Возможным объяснением подобных зависимостей MC допороговых гетероструктур (Co/CoO)₆₀ может служить наличие в структуре прослоек кобальта не только отдельных наногранул Co, но также кластеров Co со значительно различа-

ющими величинами магнитной анизотропии и диполь-дипольным взаимодействием между кластерами и ближайшими гранулами, как это имело место в гранулированных нанокompозитах $\text{Co-Al}_2\text{O}_n$ [161].

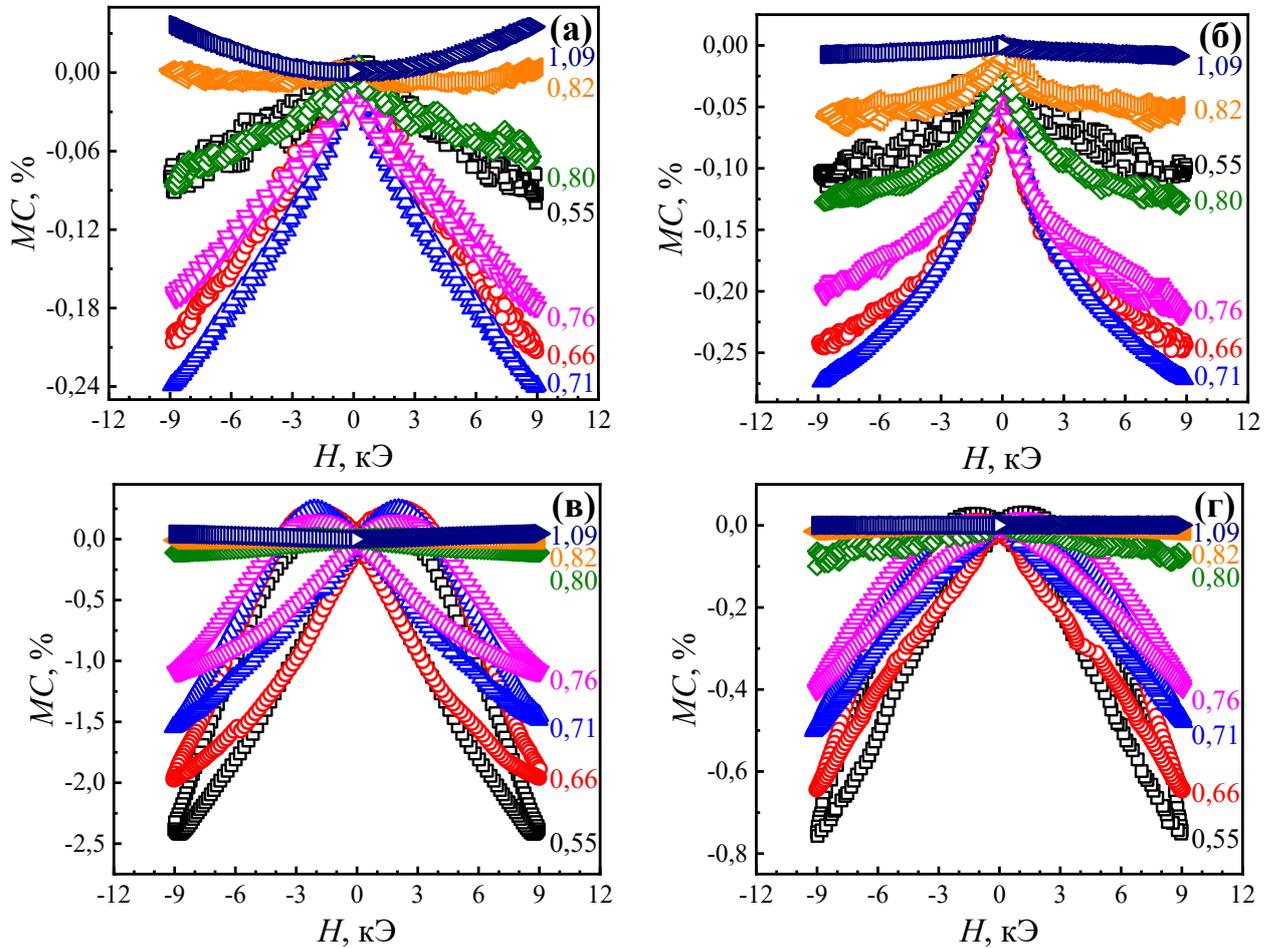


Рисунок 5.10 – Зависимости МС от напряженности внешнего магнитного поля для многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, измеренные при температуре 300 К:

($H \perp \text{пл}$, $H \perp I$) (а) ($H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$) (б), измеренные при температуре 77 К:

($H \perp \text{пл}$, $H \perp I$) (в) ($H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$) (г). Цифрами у кривых показаны значения (нм) толщины h_{Co}

Для многослойных гетероструктур с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} > 0,8$ нм, т.е. находящихся за ПП, в отличие от допороговых было обнаружено анизотропное МС, при этом не только величина, но и знак МС определяются взаимной ориентацией тока, магнитного поля и плоскости гетероструктуры: для случая $H \perp \text{пл}$, $H \perp I$ МС положительно, в то время как для $H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$ – отрицательно. Величина МС

запороговых гетероструктур не превышала по модулю $\approx 0,07\%$, что меньше величины M_S для гетероструктур до ПП. В отличие от нанокompозитов $Co_n(CoO)_{100-n}$, полученных методом ИЛН составной мишени [117], для многослойных гетероструктур $(Co/CoO)_{60}$ гистерезиса на зависимостях $M_S(H)$, измеренных при комнатной температуре, обнаружено не было. Однако гистерезис M_S доперколяционных гетероструктур появляется при измерении в области низких температур (77 К), также, как и положительная составляющая (рисунок 5.10в и 5.10г).

При эквивалентной толщине $h_{Co} < 0,8$ нм прослойки кобальта не являются сплошными. В таких пленках атомы кобальта собираются в гранулы и кластеры, разделенные друг от друга тонкой диэлектрической прослойкой. Поскольку толщина прослоек CoO в полученных тонких пленках $\approx 2,4$ нм, то вероятность туннелирования между гранулами разных слоев значительно меньше вероятности туннелирования между гранулами одного слоя. С увеличением эквивалентной толщины h_{Co} , размеры гранул и кластеров увеличиваются, расстояние между ними уменьшается, что приводит к появлению сильного диполь-дипольного взаимодействия как между гранулами и кластерами в пределах прослоек и между слоями, обуславливающего наличие ферромагнитного упорядочения и уменьшение величины ТМС.

Для многослойных гетероструктур $(Co/CoO)_{60}$ с понижением температуры ниже T_N формирование закрепляющего слоя также происходит, однако его влияние на M_S сильно зависит от эквивалентной толщины h_{Co} . Как видно из рисунка 5.11 (кривые 1 и 2) зависимости M_S от эквивалентной толщины h_{Co} при комнатной температуре характеризуются наличием максимума вблизи ПП, как это имеет место в композитах ферромагнитный металл–диэлектрик при условии реализации механизма, спин-зависимого туннелирования. Однако ситуация кардинально меняется при охлаждении до температуры 77 К (т.е. ниже температуры Нееля CoO): несмотря на то, что величина M_S , измеренная в поле напряженностью 9 кЭ для допороговых гетероструктур увеличивается при охлаждении до 77 К относительно измеренных при 300 К, что также не противоречит предположению о спин-зависи-

мом туннелировании, как определяющем механизме МС в исследуемых гетероструктурах, положение максимума либо смещается в сторону более малых толщин h_{Co} (кривые 3 и 4 рисунок 5.11), либо максимум отсутствует вообще, а увеличение толщин h_{Co} приводит к монотонному уменьшению МС до ПП.

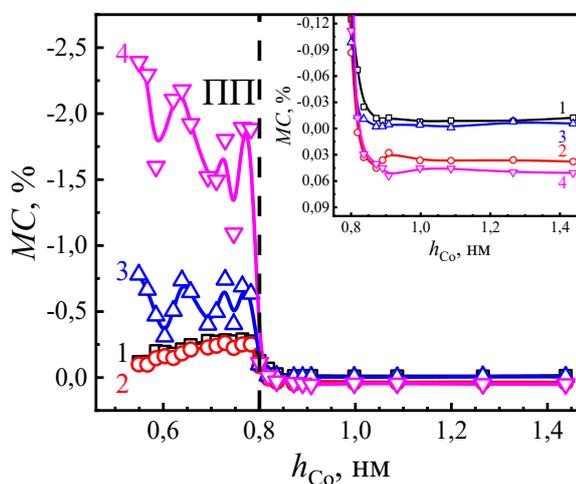


Рисунок 5.11 – Зависимости МС от эквивалентной толщины h_{Co} для многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, измеренные при температуре 300 К: (Н || пл, Н || I) (1) (Н ⊥ пл, Н ⊥ I) (2), при температуре 77 К: (Н || пл, Н || I) (3) (Н ⊥ пл, Н ⊥ I) (4)

Очень интересным представляется факт наличия немонотонной зависимости, своего рода «осцилляций», МС с ростом h_{Co} при температуре 77 К.

Возможно, значения находятся в рамках погрешности эксперимента, а возможно это проявления обменного взаимодействия между гранулами соседних слоев через прослойку CoO или какие-либо иные эффекты.

Дальнейшие более детальные исследования помогут прояснить полученные результаты как для нанокompозитов $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$, так и для многослойных гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$.

5.2 Анизотропное и лоренцево магнитосопротивление в многослойных гетероструктурах (Co/CoO)₆₀

При увеличении эквивалентной толщины $h_{Co} > 0,8$ нм магнитные свойства многослойных гетероструктур (Co/CoO)₆₀ определяются квазисплошными прослойками металлического кобальта, что приводит к изменению природы МС. Следует также отметить, что при послойном осаждении форма кластеров будет преимущественно двухмерная, что должно привести к появлению сильной магнитной анизотропии полученных пленок и как следствие появление АМС [162,163].

АМС характерно для ферромагнитных материалов, где электрическое сопротивление зависит от угла между направлением намагниченности образца и внешним магнитным полем. Причина заключается в спин-орбитальном взаимодействии электронов, приводящем к спин-зависимому рассеянию электронов (коэффициент рассеяния для спинов сонаправленных и противонаправленных по отношению к намагниченности образца будет различный). Особенно велика магнитная анизотропия в монокристаллах ферромагнетиков [164,165], где она проявляется в наличии осей лёгкого намагничивания, вдоль которых направлены векторы самопроизвольной намагниченности ферромагнитных доменов.

Действительно, для гетероструктур вблизи и за ПП было обнаружено АМС (рисунок 5.12а) [166]. В случае, когда магнитное поле направлено вдоль плоскости пленки МС было отрицательно независимо от взаимной ориентации магнитного поля и электрического тока (зависимости 1,2 и 4,5 рисунок 5.12а), однако максимальная величина МС зависела от направления прохождения электрического тока относительно одной из сторон гетероструктуры, что может указывать на наличие магнитной анизотропии в плоскости пленки. С ростом эквивалентной толщины h_{Co} отрицательное МС уменьшалось (рисунок 5.10).

Изучение магнитооптического эффекта Керра показало наличие магнитной анизотропии в гетероструктурах вблизи ПП и за ним. При этом ОЛН и ОТН намагниченности находятся в плоскости пленки и перпендикулярны друг другу (рисунок 5.12б).

Однако, как это видно из рисунка 5.8, ОЛН образуют конус с достаточно большим углом раствора (более 80 град.). Следует уточнить, что наблюдаемые ОЛН и ОТН являются проекциями на плоскость пленки. Определение пространственного расположения ОЛН и ОТН, т.е. их углового отклонения относительно плоскости пленки не представляется возможным по причине влияния фактора формы образца (размагничивающего фактора).

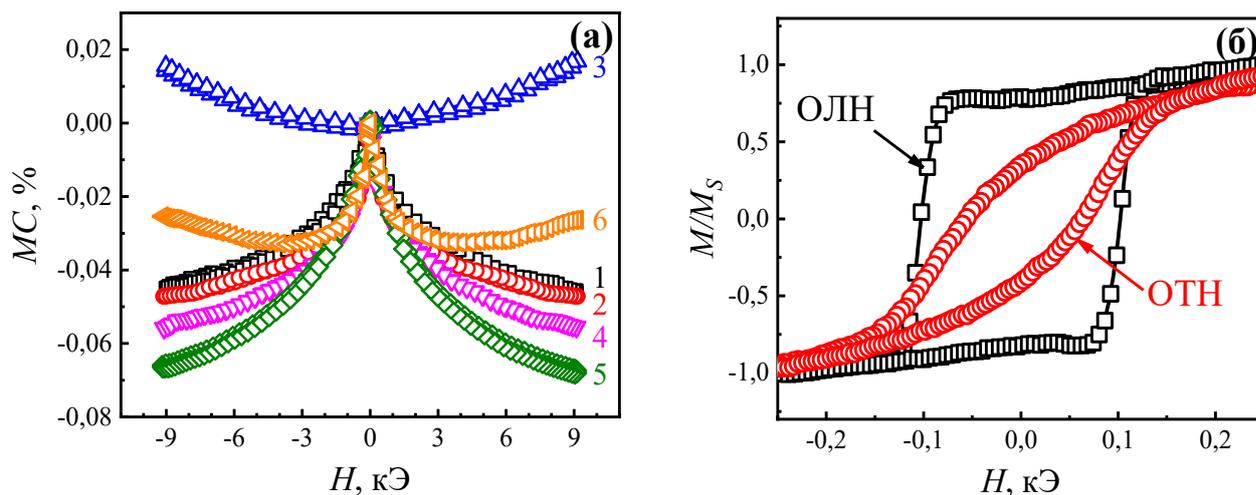


Рисунок 5.12 – Полевые зависимости МС (а) (1 – $H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$, $I \parallel \text{ОТН}$; 2 – $H \parallel \text{пл}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$; 3 – $H \perp \text{пл}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$; 4 – $H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$, $I \parallel \text{ОЛН}$; 5 – $H \parallel \text{пл}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОЛН}$; 6 – $H \perp \text{пл}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОЛН}$) и петли гистерезиса МОКЕ (б), измеренные при комнатной температуре для многослойной гетероструктуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной $h_{\text{Co}} \approx 0,84$ нм (вблизи ПП)

В случае, когда магнитное поле направлено в плоскости пленки, а электрический ток направлен параллельно ОТН, полевые зависимости МС практически совпадают (кривые 1 и 2 рисунок 5.12а). Магнитные моменты проводящих перколяционных Co кластеров в отсутствие внешнего магнитного поля ориентируются преимущественно вдоль ОЛН (перпендикулярно ОТН), образуя конус. При $H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$, $I \parallel \text{ОТН}$ в отсутствие внешнего поля магнитные моменты ориентируются вдоль оси конуса ОЛН, а приложение внешнего поля будет приводить к их ориентированию вдоль направления тока, что, согласно модели АМС в ферромагнетиках должно приводить к увеличению сопротивления (ПМС), однако, как это видно из

рисунка 5.12а (кривая 1) это не соответствует результатам эксперимента. Аналогичное противоречие наблюдается при условиях, когда $H \parallel \text{пл}$, $H \parallel I$, $I \parallel \text{ОЛН}$ (кривая 4 рисунок 5.12а), для которого приложение внешнего магнитного поля приводит к уменьшению угла раствора конуса, образованного магнитными моментами, уменьшая таким образом составляющую, перпендикулярную току, которое также должно приводить к ПМС. Это нетипично для АМС, наблюдаемого в ферромагнитных материалах, в частности Co [163], что может быть объяснено как наличием составляющих ОЛН и ОТН перпендикулярных плоскости пленки, так и наличием дополнительных механизмов отрицательного МС, обсуждение которых приводилось в работе [125] для многослойных гетероструктур $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$.

С другой стороны, для случаев, когда $H \parallel \text{пл}$, $H \perp I$ внешнее поле ориентирует магнитные моменты перпендикулярно направлению распространения тока (кривые 2 и 5 рисунок 5.12а), что приводит к появлению отрицательного МС, при этом изменение сопротивления максимально для случая, когда $I \parallel \text{ОЛН}$ (кривая 5 рисунок 5.12а). Это согласуется с моделью АМС ферромагнитных материалов, поскольку в случае $H \parallel \text{пл}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$ (кривая 2 рисунок 5.12а) при приложении внешнего поля уменьшается угол раствора конуса, образованного магнитными моментами, уменьшая таким образом составляющую, продольную току.

Для случая, когда магнитное поле было направлено перпендикулярно плоскости пленки ($H \perp \text{пл}$), а следовательно и направлению тока ($H \perp I$) (кривые 3 и 6 рисунок 5.12а), МС содержало два вклада (положительный и отрицательный) когда электрический ток был направлен вдоль ОЛН (кривая 6 рисунок 5.12а) и было только положительным в случае, когда электрический ток был направлен вдоль ОТН (кривая 3 рисунок 5.12а).

При таких условиях измерения внешнее магнитное поле стремится ориентировать магнитные моменты перколяционных Co кластеров перпендикулярно плоскости пленки и направлению электрического тока, что при условии реализации АМС должно было бы приводить к уменьшению сопротивления и, следовательно, к отрицательному МС. Действительно для гетероструктуры с $I \parallel \text{ОЛН}$ при условии

$H \perp \text{пл}$, $H \perp I$ (кривая 6 рисунок 5.12а) в области слабых полей (не более 3 кЭ) имеется отрицательная составляющая. Дальнейшее увеличение напряженности внешнего поля для этой гетероструктуры приводит к появлению положительного вклада в МС.

Для гетероструктуры с $I \parallel \text{ОТН}$ ($I \perp \text{ОЛН}$) в отсутствии внешнего поля магнитные моменты перколяционных Co кластеров расположены преимущественно перпендикулярно направлению протекания электрического тока в плоскости пленки. При увеличении внешнего поля и условиях $H \perp \text{пл}$, $H \perp I$ магнитные моменты будут ориентироваться перпендикулярно плоскости пленки, однако взаимная ориентация намагниченности гетероструктуры и тока при этом не изменится. Поэтому для гетероструктуры с $H \perp \text{пл}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$ отрицательного вклада МС не наблюдается, а увеличение магнитного поля приводит к росту МС (кривая 3 рисунок 5.12а).

Заметим, что при комнатной температуре зависимость положительного МС близка к параболической (кривая 3 и 6 рисунок 5.12а), магнитного гистерезиса не наблюдается. Такие зависимости могут быть следствием наличия классического, лоренцева МС, являющегося следствием искривления траектории носителей заряда (электронов) в магнитном поле.

Таким образом, МС гетероструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ до ПП определяется механизмом спин-зависимого туннелирования между гранулами и кластерами металлического Co , а за ПП – конкурирующими вкладами АМС перколяционной сеткой ферромагнитного кобальта и лоренцева МС.

5.3 Влияние обменного взаимодействия в многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{V}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ на магнитосопротивление

Во всех исследованных образцах, как в многослойных гетероструктурах $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{V}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$, так и в референтных нанокompозитах

$(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_n(\text{SiO}_2)_{100-n}$, МС отрицательно (рисунок 5.13а) и характеризуется тенденцией к насыщению в сильных полях при низких температурах (рисунок 5.13б), что указывает на спин-зависимый механизм туннелирования.

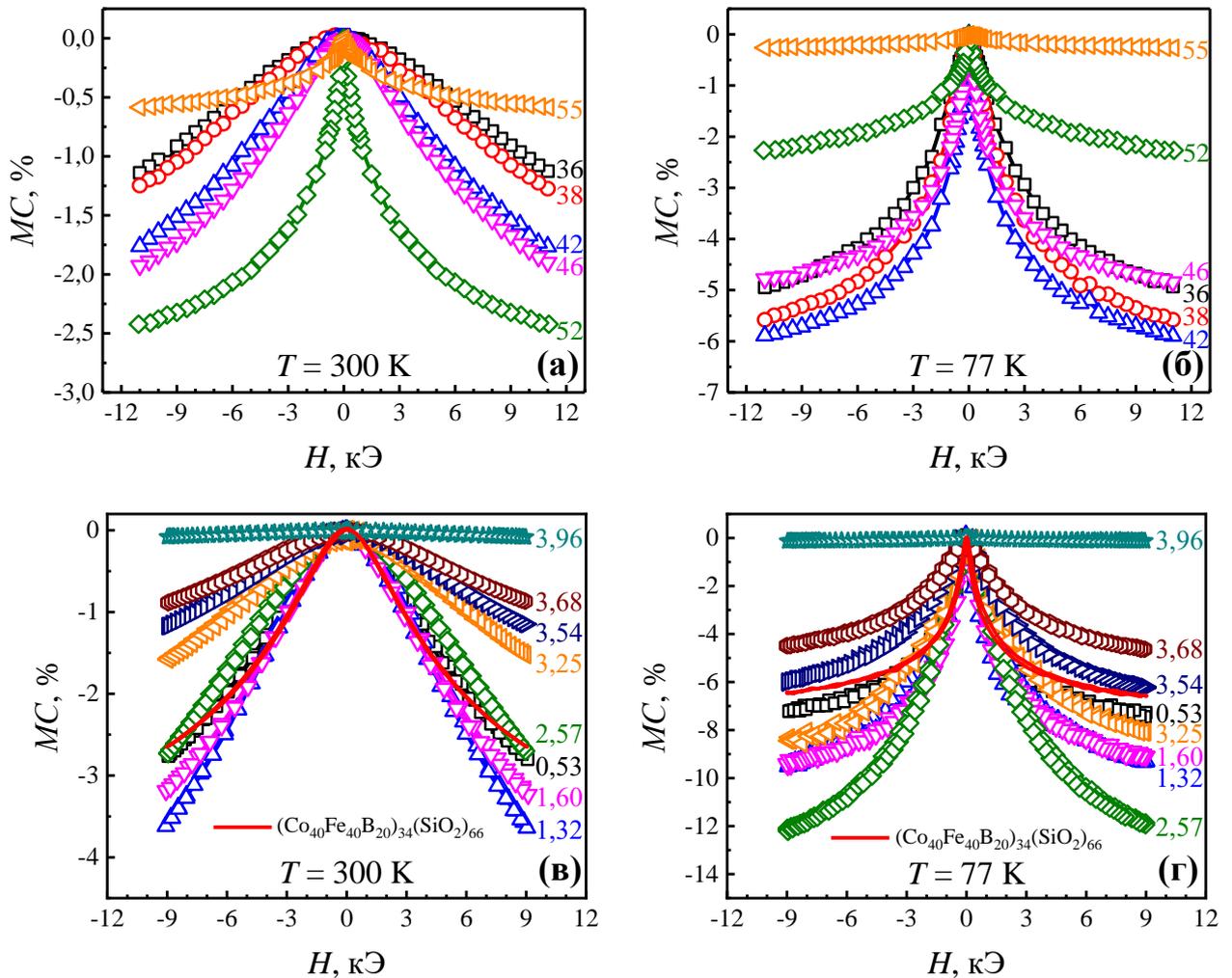


Рисунок 5.13 – Полевые зависимости МС нанокompозитов $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_n(\text{SiO}_2)_{100-n}$ (а,б) (значения n указаны вблизи кривых), а также многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ (в,г) с различной толщиной h_{ZnO} (показаны вблизи кривых в нм) при 300 К (а,в) и 77 К (б,г)

Неожиданным результатом является повышение МС в некоторых многослойных гетероструктурах по сравнению с референтным нанокompозитом $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ с составом, использованным при получении многослойных гетероструктур, и зависимость МС от толщины прослоек h_{ZnO} [167–169]. Ниже дано объяснение этих особенностей, проявляющихся как при комнатной, так и при низких температурах. Стоит отметить, что МС в некоторых структурах положителен

и не насыщается [125,170], но в нашем случае МС отрицательно для всех гетероструктур.

Исследования МС в синтезированных многослойных гетероструктурах показали, что введение в наноккомпозит $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{30}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ прослойк ZnO нанометровой толщины может приводить при комнатной температуре, как к увеличению МС при толщине прослоек оксида цинка $h \approx 2$ нм, так и к уменьшению при толщине ZnO $h \approx 4$ нм (рисунок 5.14а).

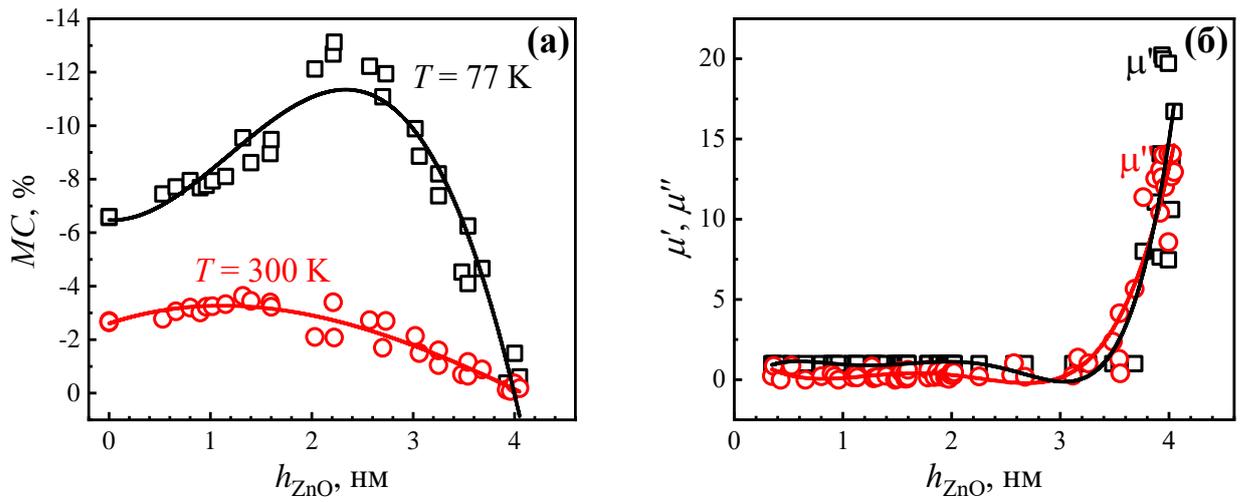


Рисунок 5.14 – МС многослойных гетероструктур

$\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{30}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ в зависимости от h_{ZnO} , измеренное при температуре $T = 300$ К и $T = 77$ К (а), действительная и мнимая части магнитной проницаемости, измеренные при температуре $T = 300$ К в зависимости от h_{ZnO} (б)

Снижение температуры исследования от комнатной до 77 К еще больше изменяет разброс значений МС многослойных гетероструктур и наноккомпозита (рисунок 5.14а). Минимальные значения МС свидетельствуют о том, что раз ориентация магнитных гранул наноккомпозита двух соседних гранул стремится выстроиться параллельно друг другу. Более высокие значения МС по сравнению с наноккомпозитом свидетельствуют о том, что разориентация магнитных гранул наноккомпозита двух соседних гранул увеличивается и магнитные моменты гранул наноккомпозитных слоев стремятся ориентироваться антипараллельно.

Причиной такого явления, вероятно, является обменное взаимодействие через промежуточный слой ZnO между двумя слоями нанокompозита, состоящих из ферромагнитных гранул, величина и знак которого определяют качественную и количественную оценку всей многослойной гетероструктуры. Отметим, что эффекта ГМС в слоистых структурах ферромагнитных пленок с немагнитной прослойкой, обусловленного антиферромагнитной частью осциллирующего взаимодействия в пленках, где в качестве материалов промежуточного слоя выбирался переходный металл (Cr, Cu, V, Au и др.) [22]. Величина МС в этом случае определяется толщиной немагнитной прослойки (и экспериментальные зависимости характеризуются, как правило, двумя ярко выраженными максимумами при толщинах, соответствующих максимуму величины антиферромагнитного взаимодействия между ферромагнитными слоями (для системы NiFe/Cu/NiFe антиферромагнитное упорядочение реализуется при толщине $h \approx 2$ нм, а ферромагнитное при $h \approx 4$ нм, что коррелирует с нашими измерениями) [171].

Для подтверждения высказанной гипотезы были проведены измерения высокочастотной магнитной проницаемости синтезированных многослойных гетероструктур и показано, что при толщине прослоек ZnO, близкой к $h \approx 4$ нм (рисунок 5.14б), видно, как действительная, так и мнимая составляющие комплексной магнитной проницаемости при этих толщинах вырастают до значений, характерных для ферромагнитного состояния.

Дальнейшие исследования на этой и других системах помогут разобраться в правильности предложенной гипотезы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Методом ионно-лучевого распыления составной мишени в атмосфере Ar и атмосфере Ar+O₂ были синтезированы гетерогенные наноконпозиты Co_n(CoO)_{100-n}. На основании анализа концентрационных зависимостей удельного электрического сопротивления и термоэдс установлено, что полученные системы являются перколяционными. Показано, что введение в распылительную камеру кислорода смещает положение порога протекания в сторону меньших концентраций металлической фазы, что связывается с особенностями морфологии наноконпозитов, когда малые металлические наночастицы кобальта расположены на границах крупных частиц CoO, а также уменьшением размера включений металлической фазы.

2. Установлено, что в наноконпозитах Co_n(CoO)_{100-n} до порога протекания в области температур 80 – 140 К доминирующим механизмом переноса заряда является прыжковый механизм проводимости по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми с переменной длиной прыжка, сменяемый в области температур 140 – 280 К на прыжки по ближайшим соседям. За порогом протекания, проводимость определяется сеткой металлических гранул и характеризуется положительным температурным коэффициентом электрического сопротивления. Для составов вблизи порога перколяции наблюдается отрицательное туннельное МС с гистерезисом, коррелирующим с магнитным гистерезисом. Природа магнитного гистерезиса ансамбля наночастиц Co при малом содержании Co связана как с морфологией наноконпозитов, так и с возможным усилением магнитной анизотропии вблизи интерфейса Co/CoO из-за эффекта магнитной близости.

3. Методом ионно-лучевого распыления керамической мишени CoO и металлического Co и последующего послойного осаждения в атмосфере Ar на вращающуюся подложку были получены структуры (Co/CoO)₆₀. Исследование структуры методами РФА и ПЭМ показало, что полученные структуры являются многослойными, при этом увеличение эквивалентной толщины прослоек Co до ≈ 0,8 нм при-

водит к переходу от островковых слоев Co в сплошной матрице CoO к многослойной гетероструктуре, состоящей из квазисплошных слоев металлического Co и непроводящего электрический ток CoO.

4. Установлено, до порога протекания ($h_{Co} \approx 0,8$ нм) в области низких температур происходит последовательная смена доминирующего механизма переноса от прыжкового механизма проводимости по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми с переменной длиной прыжка (80 – 140 К) к прыжкам по ближайшим соседям (140 – 280 К). Для многослойных гетероструктур (Co/CoO)₆₀, расположенных за порогом протекания проводимость определяется двумерными сетками металлических гранул с положительным коэффициентом электрического сопротивления.

5. Методом магнитооптического эффекта Керра и с помощью вибрационного магнитометра изучены магнитные свойства многослойной гетероструктуры (Co/CoO)₆₀. Результаты исследований показали наличие магнитной анизотропии в гетероструктурах вблизи порога протекания и за ним. При этом оси легкой и трудной намагниченности находятся в плоскости пленки и перпендикулярны друг другу. Магнитосопротивление многослойных гетероструктур (Co/CoO)₆₀ до порога протекания определяется механизмом спин-зависимого туннелирования между гранулами и кластерами металлического кобальта, а за порогом конкурирующими вкладками анизотропного магнитосопротивления перколяционной сеткой ферромагнитного кобальта и лоренцева магнитосопротивления.

6. Методом ионно-лучевого распыления двух мишеней (составной Co₄₀Fe₄₀B₂₀ с навесками SiO₂ и керамической ZnO) синтезированы многослойные гетероструктуры $\{[(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{34}(SiO_2)_{66}]/[ZnO]\}_{50}$, (где 50 – число бислоев в пленке). Комплексное исследование структурных, электрических и магниторезистивных свойств многослойных гетероструктур $\{[(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{34}(SiO_2)_{66}]/[ZnO]\}_{50}$ показало зависимость этих свойств от толщины полупроводниковых прослоек ZnO. Установлено, что нанокompозитные слои синтезированных пленок имеют аморфную структуру, а полупроводниковые прослойки ZnO имеют гексагональную кристаллическую структуру с группой симметрии *P63mc*.

7. Показано, что температурная зависимость удельного электрического сопротивления ZnO, синтезированных на вращающуюся подложку в диапазоне 80 – 280 К описывается логарифмическим законом $\rho(T) \propto f(\ln(T))$, а для нанокompозитов $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$, полученных на вращающуюся подложку законом «1/2». Для многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ температурная зависимость удельного электрического сопротивления в диапазоне температур 80 – 280 К подчиняется закону «1/4», характерному для прыжкового механизма проводимости по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми с переменной длиной прыжка. Установлено, что плотность электронных состояний на уровне Ферми нелинейно растет с увеличением толщины полупроводниковых прослоек ZnO.

8. Магнитосопротивление многослойных гетероструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_{50}$ в поле 9 кЭ при 300 К достигает 4 % и 12 % при 77 К, что в два раза превышает максимальное значение, полученное для референтного нанокompозита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$.

9. Методом ионно-лучевого распыления синтезированы структуры $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$. Структура тонких пленок $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ – слоистая, при этом слои ZnO – кристаллические, а C – аморфные. Установлено, что в многослойных гетероструктурах $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$ при $h \leq 150$ нм в области температур 80 – 170 К доминирующим механизмом переноса заряда является прыжковая проводимость с переменной длиной прыжка по локализованным состояниям, лежащим в узкой полосе энергий вблизи уровня Ферми для 2D систем. При переходе от островковой структуры к сплошной в слоях ZnO при толщинах $h \geq 150$ нм сопровождается переходом от сильной к слабой локализации носителей заряда и сменой механизма проводимости в области температур 80 – 280 К.

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ

- АМС – Анизотропное магнитосопротивление;
- АФМ – Антиферромагнитный;
- ГМС – Гигантское магнитосопротивление;
- ИЛН – Ионно-лучевое напыление;
- КМС – Колоссальное магнитосопротивление;
- МОКЕ – Магнитооптический эффект Керра;
- МС – Магнитосопротивление;
- МТП – Туннельный магнитный переход;
- НМ – Немагнитный;
- ОКР – Область когерентного рассеяния;
- ОЛН – Ось легко намагничивания;
- ОМС – Обычное магнитосопротивление;
- ОТН – Ось трудного намагничивания;
- ПМС – Положительное магнитосопротивление;
- ПП – Порог протекания (перколяции);
- ППБС – Прыжковая проводимость по ближайшим соседям;
- ПППДП – Прыжковая проводимость с переменной длиной прыжка;
- ПЭМ – Просвечивающая электронная микроскопия;
- РККИ – Рудерман-Киттель-Кацуя-Исида;
- РФА – Рентгеноструктурный фазовый анализ;
- ТМС – Туннельные магнитосопротивление;
- ТЭДС – Термоэлектродвижущая сила;
- ФМ – Ферромагнитный;
- СIP – Ток в плоскости;
- СPP – Ток перпендикулярно плоскости;
- ρ – Удельное электрическое сопротивление;
- S – Термоэдс.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kiesler E. Miniature Device Could Unlock the Promise of Some Kidney Cancer Drugs / E. Kiesler // Memorial Sloan Kettering Cancer Center. – 2015. – Vol. 8. – P. 048979.
2. Li D. Electrospinning of Nanofibers: Reinventing the Wheel? / D. Li, Y. Xia // *Advanced Materials*. – 2004. – Vol. 16. – № 14. – P.1151 – 1170.
3. Omanović-Mikličanin E. Nanocomposites: a brief review. / E. Omanović-Mikličanin, A. Badnjević, A. Kazlagić, M. Hajlovac // *Health Technol.* – 2020. – Vol. 10. – P. 51 – 59.
4. Schmidt D. New Advances in Polymer/Layered Silicate Nanocomposites / D. Schmidt, D. Shah, E. P. Giannelis // *Current Opinion in Solid State and Materials Science*. – 2002. – Vol. 6. – № 3. – P. 205 – 212.
5. Ajayan P.M. Nanocomposite Science and Technology / P.M. Ajayan, L.S. Schadler, P.V. Braun // Wiley: New York. – 2003. – P. 112.
6. Jeon I.Y. Nanocomposites Derived from Polymers and Inorganic Nanoparticles / I.Y. Jeon, J.B. Baek // *Materials Reviews*. – 2010. – Vol. 3. – № 6. – P. 3654 – 3674.
7. Jordan J. Experimental Trends in Polymer Nanocomposites / J. Jordan, K.I. Jacob, R. Tannenbaum, M.A. Sharaf, I. Jasiuk // *Materials Science and Engineering: A*. – 2005. – Vol. 393. – № 1 – 2. – P. 1 – 11.
8. Sanchez C. Applications of Hybrid Organic–Inorganic Nanocomposites / C. Sanchez, B. Julián, P. Belleville, M. Popall // *Journal of Materials Chemistry*. – 2005. – Vol. 15. – P. 3559 – 3592.
9. Li G. Effects of Applying High Magnetic Field and Doping SiO on Magnetoresistance and Magnetic Properties of Evaporated Co Thin Films / G. Li, J. Wang, J. Du, Y. Ma, T. Liu, Q. Wang // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. – 2017. – Vol. 441. – P. 448 – 454.
10. Denardin J. C. Structural and Magnetotransport Properties of Discontinuous Co/SiO₂ Multilayers / J.C. Denardin, M. Knobel, L.S. Dorneles, L.F. Schelp // *Materials Science and Engineering: B*. – 2004. – Vol. 112. – № 2 – 3. – P. 120 – 122.

11. Beloborodov I.S. Granular Electronic Systems / I.S. Beloborodov, A.V. Lopatin, V.M. Vinokur, K.B. Efetov // Reviews of Modern Physics. – 2007. – Vol. 79. – № 2. – P. 469 – 520.

12. Fujimori H. Tunnel-type GMR in Metal-Nonmetal Granular Alloy Thin Films / H. Fujimori, S. Mitani, S. Ohnuma // Materials Science and Engineering. – 1995. – Vol. 31. – P. 219 – 223.

13. Meier H. Anomalous Hall Effect in Granular Ferromagnetic Metals and Effects of Weak Localization / H. Meier, M.Y. Kharitonov, K.B. Efetov // Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics. – 2009. – Vol. 80. – № 4. – P. 045122.

14. Granovskii A.B. Magnetorefractive Effect in Nanostructures, Manganites and Magnetophotonic Crystals Based on These Materials / A.B. Granovskii, E.A. Gan'shina, A.N. Yurasov, Yu.V. Boriskina, S.G. Yerokhin, A.B. Khanikaev, M. Inoue, A.P. Vinogradov, Yu.P. Sukhorukov // Journal of Communications Technology and Electronics. – 2007. – Vol. 52. – P. 1065 – 1071.

15. Грановский А.Б. Магниторефрактивный Эффект в Магнитных Наноконпозиатах / А.Б. Грановский, И.В. Быков, Е.А. Ганьшина, В.С. Гушин, А.А. Козлов, А.Н. Юрасов, Ю.Е. Калинин // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 2003. – Т. 123. – Вып. 6. – С. 1256 – 1267.

16. Gan'shina E. Features of Magneto-Optical Response on Multilayer Nanostructures $\{(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}/a-Si:H\}_n$ / E. Gan'shina, V. Buravtsova, A. Novikov, Yu. Kalinin, A. Sitnikov // Solid State Phenomena. – 2012. – Vol. 190. – P. 361 – 364.

17. Polyakov V.V. Magneto-Optical Kerr Effect Enhancement in Co–Ti–O Nanocomposite Films / V.V. Polyakov, K.P. Polyakova, V.A. Seredkin, G.S. Patrin // Solid State Phenomena. – 2012. – Vol. 190. – P. 506 – 509.

18. Burgler D.E. Exchange Coupling of Ferromagnetic Films Across Metallic and Semiconducting Interlayers / D.E. Burgler, M. Buchmeier, S. Cramm, S. Eisebitt, R.R. Gareev, P. Grunberg, C.L. Jia, L.L. Pohlmann, R. Schreiber, M. Siegel, Y.L. Qin, A. Zimina // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2003. – Vol. 15. – P. 443 – 450.

19. Васьковский В.О. Магнетизм Слоев Со в Составе Многослойных Пленок Со/Si / В.О. Васьковский, Г.С. Патрин, Д.А. Великанов, А.В. Свалов, П.А. Савин,

А.А. Ювченко, Н.Н. Щеголева // Физика Твёрдого Тела. – 2007. – Т. 49. – № 2. – С. 291 – 296.

20. Домашевская Э.П. XANES-Исследования Межатомных Взаимодействий в Многослойных Наноструктурах $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}/\alpha\text{-Si})_{40}$ и $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}/\text{SiO}_2)_{32}$ / Э.П. Домашевская, А.В. Чернышев, С.Ю. Турищев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, Д.Е. Марченко // Физика Твёрдого Тела. – 2013. – Т. 55. – № 6. – С. 1202 – 1210.

21. Kotov L.N. Influence of Annealing on Magnetic, Relaxation and Structural Properties of Composite and Multilayer Films / L.N. Kotov, V.S. Vlasov, V.K. Turkov, Y.E. Kalinin, A.V. Sitnikov // Journal of Nanoscience and Nanotechnology. – 2012. – Vol. 12. – № 2. – P. 1696 – 1699.

22. Guo Y. Spin Filtering and Spin-Polarization Reversal in Multilayered Ferromagnetic Metal/Semiconductor Heterostructures / Y. Guo, X.W. Yu, Y.X. Li // Journal of Applied Physics. – 2005. – Vol. 98. – P. 053902 – 053907.

23. Аронзон Б.А. Планарный Эффект Холла и Анизотропное Магнитосопротивление в Слоистых Структурах $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}/\alpha\text{-Si}$ с Перколяционной Проводимостью / Б.А. Аронзон, А.Б. Грановский, А.Б. Давыдов, М.Е. Докукин, Ю.Е. Калинин, С.Н. Николаев, В.В. Рыльков, А.В. Ситников, В.В. Тугушев // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 2006. – Т. 10. – № 1 (7). – С. 127 – 136.

24. Szuszkiewicz W. Interlayer Magnetic Coupling for Fe/Si Multilayers / W. Szuszkiewicz, K. Fronc, M. Baran, R. Szymczak, F. Ott, B. Hennion, E. Dynowska, W. Paszkowicz, J.B. Pelka, R. Zuberek, M. Jouanne, J.F. Morhange // Journal of Superconductivity and Novel Magnetism. – 2003. – Vol. 16. – № 1. – P. 1152 – 1158.

25. Dunets O.V. Electrical and Magnetic Performance of Multilayer Structures Based on $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{33.9}(\text{SiO}_2)_{66.1}$ Composite / O.V. Dunets, Y.E. Kalinin, M.A. Kashirin, A.V. Sitnikov // Technical Physics. – 2013. – Vol. 58. – № 9. – P. 1352 – 1357.

26. Иванов А.В. Электрические и Магнитные Свойства Мультислойных Структур $[(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}/(\alpha\text{-SiH})]_n$ / А.В. Иванов, Ю.Е. Калинин, В.Н. Нечаев, А.В. Ситников // Физика Твёрдого Тела. – 2009. – Т. 60. – № 12. – С. 2331 – 2336.

27. Komogortsev S.V. Multilayer Nanogranular Films $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{50}(\text{SiO}_2)_{50}/\text{a-Si:H}$ and $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{50}(\text{SiO}_2)_{50}/\text{SiO}_2$: Magnetic Properties / S.V. Komogortsev, E.A. Denisova, R.S. Iskhakov, A.D. Balaev, L.A. Chekanova, Y.E. Kalinin, A.V. Sitnikov // Journal of Applied Physics. – 2013. – Vol. 113. – № 17. – P. 17C105.

28. Ситников А.В. Электрические и магнитные свойства наногетерогенных систем металл-диэлектрик: дис. ... д-ра. физ.-мат. наук: 01.04.07 / Ситников Александр Викторович. – Воронеж. – 2009. – 318 с.

29. Дядькина Е.А. Морфология, Магнитные и Проводящие Свойства Гетерогенных Слоистых Магнитных Структур $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$ / Е.А. Дядькина, А.А. Воробьев, В.А. Уклеев, Д. Лотт, А.В. Ситников, Ю.Е. Калинин, О.В. Геращенко, С.В. Григорьев // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 2014. – Т. 145. – № 3. – С. 472 – 480.

30. Chekrygina Ju. Magnetic and Magnetoresonance Properties of Multilayered Systems Based on $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ Composite Layers / Ju. Chekrygina, A. Devizenko, Yu. Kalinin, S. Kirov, E. Lebedeva, I. Shipkova, A. Sitnikov, N. Syr'ev, S. Vyuzulin // Solid State Phenomena. – 2014. – Vol. 215. – С. 272 – 277.

31. Ганьшина Е А. Усиление Магнитооптического Отклика в Многослойной Системе «Нанокompозит-Гидрогенизированный Аморфный Кремний» / Е.А. Ганьшина, Н.С. Перов, С. Пхонгхирун, В.Е. Мигунов, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников // Известия РАН, сер. Физическая. – 2008. – № 10. – С. 1455 – 1457.

32. Вызулин С.А. Комплексный Анализ Статических и Динамических Магнитных Характеристик Мультислоистых Наноструктур $\text{CoFeZr}/\alpha\text{-Si}$ / С.А. Вызулин, А.В. Горобинский, Ю.Е. Калинин, Е.В. Лебедева, А.В. Ситников, Н.Е. Сырьев, И.Т. Трофименко, И.Г. Шипкова // Вестник МГУ, серия 3. Физика, Астрономия. – 2009. – № 2. – С. 32 – 36.

33. Вызулин С.А. ФМР, Магнитные и Резистивные Свойства Мультислоистых Наноструктур $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}/\text{Si}$ / С.А. Вызулин, А.В. Горобинский, Ю.Е. Калинин, Е.В. Лебедева, А.В. Ситников, Н.Е. Сырьев, И.Т. Трофименко, И.Г. Шипкова // Известия РАН, сер. Физическая. – 2010. – Т. 74. – № 10. – С. 1441 – 1443.

34. Вызулин С.А. ФМР, Магнитные и Резистивные Свойства Наноструктур с Гранулированными Магнитными Слойми / С.А. Вызулин, А.В. Горобинский, Ю.Е. Калинин, Е.В. Лебедева, А.В. Ситников, Н.Е. Сырьев, И.Т. Трофименко, Ю.И. Чекрыгина, И.Г. Шипкова // Нанотехника. – 2010. – № 3(23). – С. 16 – 21.

35. Vashuk M.V. Optical and Magneto-Optical Properties of $\{Co_{45}Fe_{45}Zr_{10}/a-Si\}_n$ Multilayers / M.V. Vashuk, E.A. Gan'shina, S. Phonghirun, I.I. Tulsy, P.N. Shcherbak, Yu.E. Kalinin // Journal of Non-Crystalline Solids. – 2007. – Vol. 353. – P. 962 – 964.

36. Beloborodov I.S. Coulomb Effects and Hopping Transport in Granular Metals / I.S. Beloborodov, A.V. Lopatin, V.M. Vinokur // Physical Review B. – 2005. – Vol. 72. – № 12. – P. 125121 (1 – 20).

37. Рыльков В.В. Транспортные Свойства Магнитных Наногранулированных Композитов с Диспергированными Ионами в Изолирующей Матрице / В.В. Рыльков, А.В. Емельянов, С.Н. Николаев, К.Э. Никируй, А.В. Ситников, Е.А. Фадеев, В.А. Демин, А.Б. Грановский // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 2020. – Т. 158. – № 1 (7). – С. 164 – 183.

38. Abeles B. Structural and Electrical Properties of Granular Metal Films / B. Abeles, P. Sheng, M.D. Coutts, Y. Arie // Advances in Physics. – 1975. – Vol. 24. – № 3. – P. 407 – 461.

39. Abeles B. Enhancement of Superconductivity in Metal Films / B. Abeles, R.W. Cohen, G.W. Cullen // Physical Review Letters. – 1966. – Vol. 17. – № 12. – P. 632 – 635.

40. Sheng P. Hopping Conductivity in Granular Metals / P. Sheng, B. Abeles, Y. Arie // Physical Review Letters. – 1973. – Vol. 31. – № 1. – P. 44 – 47.

41. Dong L. P. Electron Transport Properties of Magnetic Granular Films / L.P. Dong, B.W. Jun, S.W. Lai, L.L. Xiao, W.W. Zhen, Z.C. Yuan // Science China Physics, Mechanics and Astronomy – 2013. – Vol. 56. – №. 1. – P. 15 – 28.

42. Timopheev A.A. Growth-Induced Perpendicular Anisotropy of Grains in Co-Al-O Nanogranular Ferromagnetic Films / A.A. Timopheev, S.M. Ryabchenko, V.M. Kalita, A.F. Lozenko, P.A. Trotsenko, O.V. Stognei, A.V. Sitnikov // Physics of the Solid State – 2011. – Vol. 53. – № 3. – P. 494 – 503.

43. Meilikhov E.Z. Magnetoresistance of a Ferromagnetic Metal Nanocomposite with Nonspherical Granules / E.Z. Meilikhov, B. Raquet, H. Rakoto // Journal of Experimental and Theoretical Physics. – 2001. – Vol. 92. – № 5. – P. 816 – 819.

44. Gridnev S.A. Charge Transfer and Dielectric Properties of Granular Nanocomposites $\text{Co}_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$ / S.A. Gridnev, A.G. Gorshkov, A.V. Sitnikov, Yu.E. Kalinin // Physics of the Solid State – 2006. – Vol. 48. – № 6. – P. 1186 – 1188.

45. Zolotukhin I.V. Metal-Dielectric Nanocomposites with Amorphous Structure / I.V. Zolotukhin, Yu.E. Kalinin, A.T. Ponomarenko, V.G. Shevchenko, A.V. Sitnikov, O.V. Stognei, O. Figovsky // Journal Nanostructured Polymers and Nanocomposites – 2006. – Vol. 2. – № 1. – P. 23 – 34.

46. Kalinin Yu.E. Electrical and Magnetoresistive Properties of Nanogranular CoFeB-CaF_2 / Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, M.A. Kashirin, N.A. Dontsova, // Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Physics – 2013. – Vol. 77. – № 10. – P. 1519 – 1522.

47. Луцев Л.В. Электронный Транспорт В Магнитном Поле В Гранулированных Пленках Аморфной Двуокиси Кремния С Ферромагнитными Наночастицами / Л.В. Луцев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, О.В. Стогней // Физика Твёрдого Тела – 2002. – Т. 44. – № 10. – С. 1802 – 1810.

48. Калинин Ю.Е. Электрические свойства аморфных гранулированных нанокмпозитов $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x[\text{Pb}_{0,81}\text{Sr}_{0,04}(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})_{0,15}(\text{Zr}_{0,575}\text{Ti}_{0,425})\text{O}_3]_{1-x}$ / Ю.Е. Калинин; А.В. Ситников; А.К. Звездин // Перспективные материалы – 2007. – № 3. – С. 1 – 8.

49. Калинин Ю.Е. Физические Свойства Металл-Диэлектрических Нанокмпозитов с Аморфной Структурой / Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников; О.В. Стогней // Альтернативная энергетика и экология – 2007. – № 10. – С. 9 – 21.

50. Jones V.A. Contribution of Quantum-Well States to the RKKY Coupling in Magnetic Multilayers / V.A. Jones, C. Hanna, // Physical Review Letters. – 1993. – Vol. 71. – № 25. – P. 414 – 417.

51. Camley R.E. Theory of Giant Magnetoresistance Effects in Magnetic Layered Structures with Antiferromagnetic Coupling / R.E. Camley, J. Barnas // *Physical Review Letters*. – 1989. – Vol. 63. – № 6. – P. 1567 – 1570.

52. Barnas J. Electronic Transport in Ultrathin Magnetic Multilayers / J. Barnas, Y. Bruynseraede // *Physical Review B*. – 1996. – Vol. 53. – № 6. – P. 5449 – 5460.

53. Valet T. Classical Theory of Perpendicular Giant Magnetoresistance in Magnetic Multilayers / T. Valet, A. Fert // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. – 1993. – Vol. 121. – № 1 – 2. – P. 378 – 382.

54. Levy P.M. Interlayer Coupling and Magnetoresistance of Multilayered Structures / P.M. Levy, Z.P. Shi, S. Zhang, H.E. Camblong, J. L. Fry, // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. – 1993. – Vol. 121. – № 1 – 3. – P. 357 – 361.

55. Camblong H.E. Novel Results for Quasiclassical Linear Transport in Metallic Multilayers / H.E. Camblong, P.M. Levy // *Physical Review Letters*. – 1992. – Vol. 69. – № 19. – P. 2835 – 2838.

56. Asano Y. Parallel and Perpendicular Transport in Multilayered Structures / Y. Asano, A. Oguri, S. Maekawa // *Physical Review B*. – 1993. – Vol. 48. – № 9. – P. 6192 – 6198.

57. Itoh H. Theory of Giant Magnetoresistance for Parallel and Perpendicular Currents in Magnetic Multilayers / H. Itoh, J. Inoue, S. Maekawa // *Physical Review B*. – 1995. – Vol. 51. – P. 342 – 352.

58. Todorov T. Giant Magnetoresistance: Comparison of Band Structure and Interfacial-Roughness Contributions / T. Todorov, E.Y. Tsymbal, D. Pettifor, // *Physical Review B*. – 1996. – Vol. 54. – № 18. – P. 4121 – 4127.

59. Schep K.M. Giant Magnetoresistance Without Defect Scattering / K.M. Schep, P.J. Kelly, G.E.W. Bauer // *Physical Review Letters*. – 1995. – Vol. 74. – № 4. – P. 586 – 589.

60. Oguchi T. Fermi Velocity Effect On Magnetoresistance in Fe/Transition Metal Multilayers / T. Oguchi // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. – 1993. – Vol. 126. – № 1 – 3 – P. 519 – 520.

61. Binder S. Ab Initio Calculations of Medium-Mass Nuclei with Explicit Chiral 3N Interactions / S. Binder, J. Langhammer, A. Calci, P. Navratil, R. Roth // *Physical Review C*. – 2013. – Vol. 87. – № 2 – P. 034324.

62. Butler W.H. First-Principles Calculations of Electrical Conductivity and Giant Magnetoresistance of Co/Cu/Co Spin Valves / W.H. Butler, X.G. Zhang, D. Nicholson, J. MacLaren // *Physical Review B*. – 1995. – Vol. 52. – № 18. – P. 13399 – 13410.

63. Tsymbal E.Y. Perspectives of Giant Magnetoresistance / E.Y. Tsymbal, D. Pettifor // *Solid State Physics*. – 2001. – Vol. 56. – P. 113 – 237.

64. Blaas C. Ab Initio Calculations of Magnetotransport for Magnetic Multilayers / C. Blaas, P. Weinberger, L. Szunyogh, P. Levy, C. Sommers // *Physical Review B*. – 1999. – Vol. 60. – № 1. – P. 10016 – 10022.

65. Hartmann U. Ab Initio Calculations of Surface and Interface Properties / U. Hartmann // In *Springer Series in Surface Sciences*; Springer: Berlin, Germany. – 2000. – P. 321.

66. Chappert C. The Emergence of Spin Electronics in Data Storage / C. Chappert, A. Fert, F.N. Van Dau // *Nature Materials*. – 2007. – Vol. 6. – P. 813.

67. Zahn P. Origin of Giant Magnetoresistance: Bulk or Interface Scattering / P. Zahn, J. Binder, I. Mertig, R. Zeller, P.H. Dederichs // *Physical Review Letters*. – 1998. – Vol. 80. – P. 4309 – 4312.

68. Fert A. Two-Current Conduction in Nickel / A. Fert, I.A. Campbell // *Physical Review Letters*. – 1968. – Vol. 21. – P. 1190 – 1192.

69. Parkin S.S.P. Giant Magnetoresistance in Magnetic Nanostructures / S.S.P. Parkin // *Annual Review of Materials Science*. – 1995. – Vol. 25. – P. 357 – 388.

70. Ruderman M.A. Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons / M.A. Ruderman, C. Kittel // *Physical Review*. – 1954. – Vol. 96. – P. 99 – 102.

71. Kasuya T.A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener's Model / T. Kasuya // *Prog. Theor. Phys*. – 1956. – Vol. 16. – P. 45 – 57.

72. Yosida K. Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys / K. Yosida // *Physical Review*. – 1957. – Vol. 106. – P. 893 – 898.

73. Bruno P. Ruderman-Kittel Theory of Oscillatory Interlayer Exchange Coupling / P. Bruno, C. Chappert // *Physical Review B*. – 1992. – Vol. 46. – P. 261 – 270.

74. Bruno P. Oscillatory Coupling Between Ferromagnetic Layers Separated by a Nonmagnetic Metal Spacer / P. Bruno, C. Chappert // *Physical Review Letters*. – 1991. – Vol. 67. – P. 1602 – 1605.

75. Liu Y. Nanostructure and Magnetic Anisotropy of Co/Au Multilayers / Y. Liu, Z.S. Shan, D.J. Sellmyer // *Journal of Applied Physics*. – 1997. – Vol. 81. – P. 5061 – 5063.

76. Bakonyi I. Preparation, Structure, Magnetic, And Magneto-transport Properties of Electrodeposited Co(Ru)/Ru Multilayers / I. Bakonyi, E. Tóth-Kádár, Á. Cziráki, J. Tóth, L. Kiss, C. Ulhaq-Bouillet, V. Pierron-Bohnes, A. Dinia, B. Arnold, K. Wetzig // *Journal of The Electrochemical Society*. – 2002. – Vol. 149. – P. 469 – 473.

77. Monchesky T. Magnetoresistance and Magnetic Properties of Fe/Cu/GaS (100) / T. Monchesky, B. Heinrich, R. Urban, K. Myrtle, M. Klaua, J. Kirschner // *Physical Review B*. – 1999. – Vol. 60. – № 14. – P. 10242 – 10251.

78. Sugiyama T. Structure and Giant Magnetoresistance of Co/Ag Granular Alloy Film Fabricated by a Multilayering Method / T. Sugiyama, O. Nittono // *Thin Solid Films* – 1998. – Vol. 334. – № 1 – 2. – P. 206 – 208.

79. Inoue J. Theory of Giant Magnetoresistance in Metallic Superlattices / J. Inoue, A. Oguri, S. Maekawa // *Journal of the Physical Society of Japan*. – 1991. – Vol. 60. – № 2 – P. 376 – 379.

80. Inoue J. Transport Properties in Magnetic Superlattices / J. Inoue, H. Itoh, S. Maekawa // *Journal of the Physical Society of Japan*. – 1992. – Vol. 61. – № 4. – P. 1149 – 1152.

81. Itoh H. Electronic Structure and Transport Properties in Magnetic Superlattices / H. Itoh, J. Inoue, S. Maekawa // *Physical Review B*. – 1993. – Vol. 47. – № 10. – P. 5809 – 5818.

82. Bauer G.E. W. Perpendicular Transport Through Magnetic Multilayers / G.E. W. Bauer // *Physical Review Letters*. – 1992. – Vol. 69. – №.11. – P. 1676 – 1679.

83. Bauer G.E.W. Conductance Fluctuations in a Ballistic Metallic Point Contact / G.E.W. Bauer, A. Brataas, K.M. Schep, P.J. Kelly // *Journal of Applied Physics*. – 1994. – Vol. 75. – № 18. – P. 6704 – 6708.

84. Bratkovsky A.M. Spintronic Effects in Metallic, Semiconductor, Metal–Oxide and Metal–Semiconductor Heterostructures / A.M. Bratkovsky // *Reports on Progress in Physics*. – 2008. – Vol. 71. – №. 2. – P. 026502.

85. Zhou B.H. A Size Threshold for Enhanced Magnetoresistance in Colloidally Prepared CoFe_2O_4 Nanoparticle Solids / B.H. Zhou, J.D. Rinehart // *ACS Central Science*. – 2018. – Vol. 4. – P. 1222 – 1227.

86. Berkowitz A.E. Giant Magnetoresistance in Heterogeneous Cu-Co Alloys / A.E. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S. Zhang, F.E. Spada, F.T. Parker, A. Hutten, G. Thomas // *Physical Review Letters*. – 1992. – Vol. 68. – № 25. – P. 3745 – 3749.

87. Xiao J. Q. Giant Magnetoresistance in Non-Multilayer Magnetic Systems / J.Q. Xiao, J.S. Jiang, C.L. Chien // *Physical Review Letters*. – 1992. – Vol. 68. – № 25. – P. 3749 – 3752.

88. Coey J.M.D. Magnetoresistance of Magnetite / J.M.D. Coey, A.E. Berkowitz, L. Balcells, F.F. Putris, F.T. Parker // *Applied Physics Letters*. – 1998. – Vol. 72. – № 6. – P. 734 – 736.

89. Zhang D. Magnetite (Fe_3O_4) Core-Shell Nanowires: Synthesis and Magnetoresistance / D. Zhang, Z. Liu, S. Han, C. Li, B. Lei, M.P. Stewart, J.M. Tour, C. Zhou // *Nano Letters*. – 2004. – Vol. 4. – № 11. – P. 2151 – 2155.

90. Mi S. The Effect of Thickness-Tunable ZrO_2 Shell on Enhancing the Tunneling Magnetoresistance of Fe_3O_4 Supraparticles / S. Mi, Y. Xie, Y. Li, R. Liu, X. Liu, I.I. Smalyukh, Z. Chen // *Advanced Materials. Interfaces* – 2018. – Vol. 5. – №. 12. – P. 1800236.

91. Liu E. Investigation on Spin Dependent Transport Properties of Core-Shell Structural $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{ZnS}$ Nanocomposites for Spintronic Application / E. Liu, H. Yuan, Z. Kou, X. Wu, Q. Xu, Y. Zhai, Y. Sui, B. You, J. Du, H. Zhai // *Scientific Reports*. – 2015. – Vol. 5. – №1. – P. 11164.

92. Fan Z.W. Evolution of Magnetoresistance Mechanisms in Granular Co/C Films with Different Conduction Regimes / Z.W. Fan, P. Li, E.Y. Jiang, H.L. Bai // *Journal of Physics D: Applied Physics*. – 2013. – Vol. 46. – P. 065002.

93. Quan Z. Enhanced Room Temperature Magnetoresistance and Spin Injection from Metallic Cobalt in Co/ZnO and Co/ZnAlO Films / Z. Quan, X. Zhang, W. Liu, X. Li, K. Addison, G.A. Gehring, X. Xu // *ACS Applied Materials & Interfaces*. – 2013. – Vol. 5. – № 9. – P. 3607 – 3613.

94. Gerber A. Magnetoresistance of Granular Ferromagnets / A. Gerber, A. Milner, B. Groisman, M. Karpovsky, A. Gladkikh, A. Sulpice // *Physical Review B*. – 1997. – Vol. 55. – № 10. – P. 6446 – 6452.

95. Gack N. Magnetotransport Properties of Ferromagnetic Nanoparticles in a Semiconductor Matrix Studied by Precise Size-Selective Cluster Ion Beam Deposition / N. Gack, G. Iankevich, C. Benel, R. Kruk, D. Wang, H. Hahn, T. Reisinger // *Nanomaterials*. – 2020. – Vol. 10. – № 11. – P. 2192.

96. Leveneur J. Large Room Temperature Magnetoresistance in Ion Beam Synthesized Surface Fe Nanoclusters on SiO₂ / J. Leveneur, J. Kennedy, G.V.M. Williams, J. Metson, A. Markwitz // *Applied Physics Letters*. – 2011. – Vol. 98. – P. 053111.

97. Zeng Y.P. Large Positive Room Temperature Magnetoresistance in Nanogranular FeCo–Si–N Thin Films / Y.P. Zeng, Z.W. Liu, H.Y. Yu, Z.G. Zheng, D.C. Zeng, X.S. Gao // *Materials Letters*. – 2013. – Vol. 110. – P. 27 – 30.

98. Fukuzawa H. CPP-GMR Films with a Current-Confined-Path Nano-Oxide Layer (CCP-NOL) / H. Fukuzawa, H. Yuasa, H. Iwasaki // *Journal of Physics D: Applied Physics*. – 2007. – Vol. 40. – P. 1213 – 1220.

99. Chaubey G.S. Synthesis and Stabilization of FeCo Nanoparticles / G.S. Chaubey, C. Barcena, N. Poudyal, C. Rong, J. Gao, S. Sun, J. P. Liu // *Journal of the American Chemical Society*. – 2007. – Vol. 129. – № 23. – P. 7214 – 7215.

100. Zeng Y.P. Magnetoresistance Effects Associated with Various Electric Conduction Mechanisms in Nanostructured [C/FeCo]_n Multilayers / Y.P. Zeng; Z.W. Liu, E. Mikmeková // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. – 2017. – Vol. 421. – P. 39 – 43.

101. Wang C. The Effect of Substrate Temperature on the Microstructure and Tunneling Magnetoresistance of FeCo–Al₂O₃ Nanogranular Films / C. Wang, X. Xiao, Y. Rong, T.Y. Hsu // Journal of Materials Science. – 2006. – Vol. 41. – P. 3873 – 3879.

102. Ge S.H. Influence of Annealing Condition on Giant Magnetoresistance of FeCo–Cu Granular Films / S.H. Ge, Z.Z. Zhang, Y.Y. Lu, C.X. Li, G. Runjin // Thin Solid Films. – 1997. – Vol. 311. – P. 33 – 37.

103. Wang C. Nanoparticle Morphology in FeCo–SiO₂ Granular Films with Tunneling Giant Magnetoresistance / C. Wang, X. Xiao, Y. Rong, H. Y. Hsu // Materials Science and Engineering: B. – 2007. – Vol. 141. – № 3. – P. 126 – 131.

104. Ikeda S. Dependence of Tunnel Magnetoresistance in MgO Based Magnetic Tunnel Junctions On Ar Pressure During MgO Sputtering / S. Ikeda, J. Hayakawa, Y.M. Lee, R. Sasaki, T. Meguro, F. Matsukura, H. Ohno // Journal of Applied Physics. – 2005. – Vol. 44. – № 48. – P. 1442 – 1445.

105. Yuasa S. Giant Room Temperature Magnetoresistance in Single Crystal Fe/MgO/Fe Magnetic Tunnel Junctions / S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, K. Ando // Nature Materials. – 2004. – Vol. 3. – № 12. – P. 868 – 871.

106. Inoue J. Theory of Tunneling Magnetoresistance in Granular Magnetic Films / J. Inoue; S. Maekawa // Physical Review B. – 1996. – Vol. 53. – № 18. – P. R11927 – R11929.

107. Zhu J.G. Magnetic Tunnel Junctions / J.G. Zhu, C. Park // Materials Today. – 2006. – Vol. 9. – № 11. – P. 36 – 45.

108. Butler W.H. Tunneling Magnetoresistance from a Symmetry Filtering Effect / W.H. Butler // Science and Technology of Advanced Materials. – 2008. – Vol. 9. – № 1 – P. 014106.

109. Hayakawa J. Effect of High Annealing Temperature on Giant Tunnel Magnetoresistance Ratio of CoFeB/MgO/CoFeB Magnetic Tunnel Junctions / J. Hayakawa, S. Ikeda, Y.M. Lee, F. Matsukura, H. Ohno, // Applied Physics Letters. – 2006. – Vol. 89. – № 23 – P. 232510 – 232513.

110. Takanashi K. Fundamentals of Magnetoresistance Effects (Spintronics for Next Generation Innovative Devices) / K. Takanashi // Wiley: New York – 2015. – P. 1 – 20.

111. Butler W.H. Spin-Dependent Tunneling Conductance of Fe/MgO/Fe Junctions / W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess, J.M. MacLaren // Physical Review B. – 2001. – Vol. 63. – № 5 – P. 054416 – 054428.

112. Mitani S. Enhanced Magnetoresistance in Insulating Granular Systems: Evidence for Higher-Order Tunneling/ S. Mitani, S. Takahashi, K. Takanashi, K. Yakushiji, S. Maekawa, H. Fujimori // Physical Review Letters. – 1998. – Vol. 81. – № 13 – P. 2799 – 2802.

113. Гриднев С.А. Нелинейные явления в нано- и микрогетерогенных системах / С.А. Гриднев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, О.В. Стогней. – М.: БИНОМ. Лаборатория знаний. – 2012. – 352 с.

114. Панков, С.Ю. Транспортные явления в тонкопленочных системах $(\text{ZnO}/\text{In}_2\text{O}_3)_{83}$, $(\text{SnO}_2/\text{In}_2\text{O}_3)_{69}$, $(\text{ZnO}-\text{C})_{81}$, $(\text{In}_2\text{O}_3-\text{C})_{74}$, $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$: дис. ... канд. физ.-мат. наук: 01.04.07 / Панков Сергей Юрьевич. – Воронеж. – 2020. – 120 с.

115. Scherer R. Nachrichten Von der Gesellschaft der Wissenschaften Zu Göttingen / R. Scherer // Mathematisch-Physikalische Klasse. – 1918. – Vol. 2. – P. 98.

116. Sitnikov A.V. Structure and Electrical Properties of $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ Thin-Film Composites / A.V. Sitnikov, V.A. Makagonov, Y.E. Kalinin, S.B. Kushchev, **V.A. Foshin** / Technical Physics. – 2024. – Vol. 69. – № 6. – P. 1813 – 1822.

117. Sitnikov A.V. Magnetic, Magnetoresistive and Structural Properties of $\text{Co}_x(\text{CoO})_{100-x}$ Thin Film Composites / A.V. Sitnikov, V.A. Makagonov, Y.E. Kalinin, S.B. Kushchev, **V.A. Foshin**, N.N. Perova, E.A. Ganshina, A.B. Granovsky // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2023. – Vol. 587. – P. 171154.

118. Калаев В.А. Высокочастотные Магнитные Свойства Гранулированных Нанокмозитов Металл-Диэлектрик / В.А. Калаев, Ю.Е. Калинин, В.Н. Нечаев, А.В. Ситников // Вестник ВГТУ. – С. Материаловедение. – 2003. – Т.1. – № 13. – С. 38 – 42.

119. Бессонов Л.А. Теоретические основы электротехники: электрические цепи / Л.А. Бессонов // М.: Высшая школа. – 1984. – 556 с.

120. Гладких Н.Т. Поверхностные Явления и Фазовые Превращения в Конденсированных Пленках / Н.Т. Гладких, С.В. Дукаров, А.П. Крышталь, В.И. Ларин, В.Н. Сухов, С.И. Богатыренко / под ред. Н.Т. Гладких. – Харьков: ХНУ им. В.Н. Каразина. – 2004. – 276 с.

121. Калинин Ю.Е. Магнитные и Магниторезистивные Свойства Многослойных Наноструктур $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ / Ю.Е. Калинин, К.Г. Габриельс, В.А. Макагонов, **В.А. Фошин**, Р.Б. Моргунов, М.В. Бахметьев, Е.В. Дворецкая, И.И. Ходос // Физика Твёрдого Тела. – 2025. – Т. 67. – № 4. – С. 724 – 736.

122. Kalinin Y.E. Magnetic Properties and Magnetoresistance of Hybrid Multilayer Nanostructures $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_n$ / Y.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, V.A. Makagonov, **V.A. Foshin**, M.N. Volochaev, I.M. Pripechenkov, N.N. Perova, E.A. Ganshina, V.V. Rylkov, A.B. Granovsky // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2024. – Vol. 604. – P. 172287.

123. Ashour A. Physical Properties of ZnO Thin Films Deposited by Spray Pyrolysis Technique / A. Ashour, M.A. Kaid, N.Z. El-Sayed, A.A. Ibrahim // Applied Surface Science. – 2006. – Vol. 252. – №22. – P. 7844 – 7848.

124. Volochaev M.N. Transport and Magnetic Phenomena in ZnO-C Thin-Film Heterostructures / M.N. Volochaev, A.B. Granovsky, O.V. Zhilova, Yu.E. Kalinin, V.V. Ryl'kov, M.P. Sumets, V.A. Makagonov, S.Yu. Pankov, A.V. Sitnikov, E. Fadeev, E. Lahderanta, **V.A. Foshin** // Superlattices and Microstructures. – 2020. – Vol. 140. – P. 106449.

125. Fadeev E.A. Unconventional Magnetoresistance in ZnO/C Multilayers at Low Temperatures // E.A. Fadeev, E. Lahderanta, B.A. Aronzon, A.B. Mekhiya, Yu.E. Kalinin, V.A. Makagonov, S.Yu. Pankov, **V.A. Foshin**, A.B. Granovsky // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2021. – Vol. 535. – P. 167963.

126. Калинин Ю.Е. Влияние Термообработки на Структуру и Физические Свойства Многослойных Тонких Пленок / Ю.Е. Калинин, В.А. Макагонов,

В.А. Фошин, М.А. Каширин // Химия, Физика и Механика Материалов. – 2022. – № 2 (33). – С. 62 – 85.

127. Pankov S.Y. The Effect of Heat Treatment on Electrical Properties of [ZnO/C]₂₅ Multilayer Structure / S.Y. Pankov, M.A. Kashirin, V.A. Makagonov, M.N. Volochaev, **V.A. Foshin** // AIP Conference Proceedings. – 2020. – Vol. 2313. – P. 030005-1 – 030005-5.

128. Тарасевич Ю.Ю. Перколяция: Теория, Приложения, Алгоритмы / Ю.Ю. Тарасевич // Учеб. пособие. – М.: УРСС. – 2002. – 112 С.

129. Блатт Ф.Дж. Термоэлектродвижущая Сила Металлов: пер. с англ. И.А. Магидсона; под ред Д.К. Белашенко. / Ф.Дж. Блатт, П.А. Шредер, К.Л. Фойлз, Д. Грейг // Металлургия, М. – 1980. – 247 с.

130. Калинин Ю.Е. Транспортные Свойства Нанокompозитов Металл-Диэлектрик / Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, О.В. Стогней // Вестник ВГТУ. – 2007. – Т. 3. – № 11. – С. 6 – 17.

131. Золотухин И.В. Новые Направления Физического Материаловедения: учеб. пособие / И.В. Золотухин, Ю.Е. Калинин, О.В. Стогней // Воронеж. – 2000. – 276 с.

132. **Фошин В.А.** Влияние Кислорода на Электрические Свойства Тонких Пленок Композитов $\text{Co}_N(\text{CoO})_{100-N}$ / **В.А. Фошин**, Ю.Е. Калинин, В.А. Макагонов, А.В. Ситников // 63 Научно-Техническая Конференция Профессорско-Преподавательского Состава, Сотрудников, Аспирантов и Студентов ВГТУ. – Воронеж. – 2023. – С. 13.

133. Бабичев А.П. Физические Величины: Справочник / под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова // – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 1232 с.

134. Belousov V.A. Thermopower of Composites Containing Metallic Cobalt Nanoparticles Embedded in the Al_2O_n Dielectric Matrix/ V.A. Belousov, A.V. Granovsky, Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov // Physics of the Solid State. – 2007. – Vol. 49. – № 10. – P. 1848.

135. **Фошин В.А.** Получение и Электрические Свойства Многослойных Структур $(\text{CoFeB-SiO}_2/\text{ZnO})_N$ / **В.А. Фошин**, Т.А. Пискарева, С.А. Китаев,

И.В. Бабкина, М.А. Каширин // 63 Научно-техническая Конференция Профессорско-преподавательского Состава, Сотрудников, Аспирантов и Студентов ВГТУ. – Воронеж. – 2023. С. 14.

136. Белоусов, В.А. Термоэлектрические свойства гранулированных нанокomпозитов металл-диэлектрик: дис. ... канд. физ.-мат. наук: 01.04.07 / Белоусов Владислав Александрович. – Воронеж. – 2007. – 154 с.

137. Панков С.Ю. Термоэлектрические Свойства Тонких Пленок Оксида Цинка / С.Ю. Панков, В.А. Макагонов, М.А. Каширин, **В.А. Фошин**, К.С. Габриельс // Альтернативная и Интеллектуальная Энергетика: Материалы II международной научно-практической конференции. – 2020. – С. 253 – 254.

138. Панков С.Ю. Оксидные Тонкопленочные Полупроводники как Перспективные Термоэлектрические Материалы / С.Ю. Панков, В.А. Макагонов, Ю.Е. Калинин, О.В. Жилова, М.А. Каширин, **В.А. Фошин** // Инновационные, Информационные и Коммуникационные технологии. – Москва. – 2020. – С. 362 – 365.

139. Пискарева Т.А. Электрические Свойства Многослойных Структур $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{ZnO}]_n$ / Т.А. Пискарева, **В.А. Фошин**, И.В. Бабкина // Твердотельная Электроника, Микроэлектроника и Нанозлектроника. – Воронеж. – 2023. – С. 144 – 150.

140. Гантмахер В.Ф. Электроны в Неупорядоченных Средах / В.Ф. Гантмахер // М.: Физмалит. – 2006. – 232 с.

141. Mott N.F. Electron Processes in Non-Crystalline Materials / N.F. Mott, E.A. Davies // Oxford: Clarendon. – 1979. – 590 P.

142. Шкловский Б.И. Электронные Свойства Легированных Полупроводников / Б.И. Шкловский, А.Л. Эфрос // Наука, М. – 1979. – 416 с.

143. Kalinin Yu.E. Hopping Conductivity in Multilayer Nanostructures $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_n$ / Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, V.A. Makagonov, **V.A. Foshin**, M.N. Volochaev // **Physics of the Solid State**. – 2024. – Vol. 66. – № 11. – P. 1857 – 1865.

144. Madelung O. Non-Tetrahedrally Bonded Binary Compounds II / O. Madelung, U. Rössler, M. Schulz. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg // Springer Nature Link. – 2000. – Vol. 41D. – P. 535.

145. Захвалинский В.С. Прыжковая Проводимость с Переменной Длиной Прыжка в $\text{LaMnO}_{3+\delta}$ / В.С. Захвалинский, R. Laiho, К.Г. Лисунов, E. Lahderanta, П.А. Петренко, Ю.П. Степанов, В.Н. Стамов, М.Л. Шубников, А.В. Хохулин // Физика Твёрдого Тела. – 2007. – Vol. 49. – № 5. – С. 870 – 876.

146. Калинин Ю.Е. Структура и Электрические Свойства Тонких Пленок Са-Со-О / Ю.Е. Калинин, В.А. Макагонов, М.А. Каширин, **В.А. Фошин** // Химия, Физика и Механика Материалов. – 2023. – Т. 36. – № 1. – С. 39 – 54.

147. Kalinin Yu.E. Electrical Properties and Giant Magnetoresistance of CoFeB-SiO_2 Amorphous Granular Composites / Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, O.V. Stognei, I.V. Zolotukhin, P.V. Neretin // Materials Science and Engineering – 2001. – A304 (1). – P. 941 – 945.

148. Meyer B.K. Bound Exciton and Donor-Acceptor Pair Recombinations in ZnO/ B.K. Meyer, H. Alves, D.M. Hofmann, W. Kriegseis, D. Forster, F. Bertram, J. Christen, A. Hoffmann, M. Straßburg, M. Dworzak, U. Haboeck, A.V. Rodina // Physica Status Solidi (b). – 2004. – Vol. 241. – № 2. – P. 231 – 260.

149. Bondarenko V.B. Criterion for Strong Localization on a Semiconductor Surface in the Thomas–Fermi Approximation / V.B. Bondarenko, A.V. Filimonov // Semiconductors. – 2017. – Vol. 51. – № 10. – P. 1321 – 1325.

150. Стогней О.В. Влияние Структурного Состояния на Механизм Электропереноса в Нанокompозитах $\text{Co}_x(\text{Al}_2\text{O}_N)_{100-x}$ и $\text{Co}_x(\text{CaF}_N)_{100-x}$ / О.В. Стогней, А.А. Гребенников // Вестник воронежского государственного технического университета. 2010 – Вып. 6. – № 1. – С. 173 – 176.

151. Самсонов Г.В. Физико-Химические Свойства Окислов / Г.В. Самсонов, А.Л. Борисова, Т.Г. Жидкова // Металлургия, М. – 1978. – 472 с.

152. Полянская Т.А. Квантовые Поправки к Проводимости в Полупроводниках с Двумерным и Трехмерным Электронным Газом / Т.А. Полянская,

Ю.В. Шмарцев // Физика и Техника Полупроводников. – 1989. – Т. 23. – № 1. – С. 3 – 32.

153. Калинин Ю.Е. Магнитосопротивление в Тонких Нанокристаллических Пленках $\text{Co}_x\text{CoO}_{1-x}$ / Ю.Е. Калинин, В.А. Макагонов, А.В. Ампилогов, **В.А. Фошин** // 62 Научно-Техническая Конференция Профессорско-Преподавательского Состава, Сотрудников, Аспирантов и Студентов. Воронеж. – 2022. – С. 27 – 28.

154. Moodera J.S. Spin Polarized Tunneling in Ferromagnetic Junctions / J.S. Moodera, G. Mathon // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 1999. – Vol. 200. – № 1 – 3. – P. 248 – 273.

155. Slonczewski J.C. Conductance and Exchange Coupling of Two Ferromagnets Separated by Tunneling Barrier / Slonczewski J.C. // Physical Review B. – 1989. – Vol. 39. – № 10. – P. 6995 – 7002.

156. Mitani S. Spin-Dependent Tunneling Phenomena in Insulating Granular Systems / S. Mitani, H. Fujimori, S. Ohnuma // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 1997. – Vol. 165. – № 1 – 3. – P. 141 – 148.

157. Sankar S. Spin-Dependent Transport of Co– SiO_2 Granular Films Approaching Percolation / S. Sankar, A.E. Berkowitz, D.J. Smith // Physical Review B. – 2000. – Vol. 62. – № 21. – P. 14273 – 14278.

158. Fadeev E.A. High-field Magnetoresistance of Magnetic Nanocomposites Near the Percolation Threshold / E.A. Fadeev, M.A. Shakhov, E. Lähderanta, A.N. Taldenkov, A.L. Vasiliev, A.V. Sitnikov, V.V. Rylkov, A.B. Granovsky // Journal of Experimental and Theoretical Physics. – 2021. – Vol. 133. – № 6. – P. 771 – 778.

159. Sitnikov A.V. Magnetic Hysteresis, Magnetoresistance and Structure of $\text{Co}_n(\text{CoO})_{100-n}$ Thin-Film Composites / A.V. Sitnikov, V.A. Makagonov, Yu.E. Kalinin, S.B. Kushchev, **V.A. Foshin**, A.B. Granovsky, E.A. Gan'shina, N.N. Perova // Samarkand International Symposium on Magnetism. – Samarkand. – 2023. – P. 286.

160. Peng D.L. Characteristic Tunnel-type Conductivity and Magnetoresistance in a CoO-coated Monodispersive Co Cluster Assembly /, K. Sumiyama, S. Yamamuro, T. Hihara, T.J. Konno // Applied Physics Letters. – 1999. – Vol. 74. – № 1. – P. 76 – 78.

161. Stognei O.V. Isotropic Positive Magnetoresistance in Co-Al₂O_n Nanocomposites / O.V. Stognei, A.V. Sitnikov, Y.E. Kalinin, S.F. Avdeev, M.N. Kopytin // *Physics of the Solid State*. – 2007. – Vol. 49. – № 1. – P. 164 – 170.

162. Вонсовский С.В. Магнетизм. Магнитные Свойства Диа-, Пара-, Ферро-, Антиферро-, и Ферримагнетиков / С.В. Вонсовский // *Наука М.* – 1971. – 1032 с.

163. El-Tahawy M. Anisotropic Magnetoresistance (AMR) of Cobalt: hcp-Co vs. fcc-Co / M. El-Tahawy, L. Péter, L.F. Kiss, J. Gubicza, Zs. Czigány, G. Molnár, I. Bakonyi // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. – 2022. – Vol. 560. – P. 169660.

164. Акулов Н.С. Ферромагнетизм / Н.С. Акулов // *ОГИЗ М.* – 1939. – 188 с.

165. Ritzinger P. Anisotropic Magnetoresistance: Materials, Models and Applications / P. Ritzinger, K. Výborný // *Royal Society Open Science*. – 2023. – Vol. 10. – P. 230564.

166. Калинин Ю.Е. Анизотропное Магнсопротивление в Многослойных Структурах Co/CoO / Ю.Е. Калинин, В.А. Макагонов, М.А. Каширин, А.В. Ампилогов, **В.А. Фошин** // 62 Научно-Техническая Конференция Профессорско-Преподавательского Состав, Сотрудников, Аспирантов и Студентов. – Воронеж. – 2022. – С. 43 – 44.

167. Калинин Ю.Е. Магнитные Свойства и Магнитосопротивление Многослойных Наноструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_N$ / Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, В.А. Макагонов, **В.А. Фошин**, М.Н. Волочаев, И.М. Припеченков, Н.Н. Перова, Е.А. Ганьшина, В.В. Рыльков, А.Б. Грановский // *Новое в Магнетизме и Магнитных Материалах*. – Москва. – 2024. – С. 119 – 122.

168. Калинин Ю.Е. Магнитные Свойства Многослойных Наноструктур $\{[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{ZnO}]\}_N$ / Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, В.А. Макагонов, **В.А. Фошин** // 64 Научно-Техническая Конференция Профессорско-Преподавательского Состав, Сотрудников, Аспирантов и Студентов ВГТУ. – Воронеж. – 2024. – С. 30.

169. Калинин Ю.Е. Влияние Прослойки ZnO на Магнитные и Магниторезистивные Свойства Многослойных Наноструктур (Co₄₀Fe₄₀B₂₀-SiO₂)/ZnO / Ю.Е. Калинин, В.А. Макагонов, Т.А. Пискарева, А.В. Ситников, **В.А. Фошин** // 63 Научно-

Техническая Конференция Профессорско-Преподавательского Состава, Сотрудников, Аспирантов и Студентов ВГТУ. – Воронеж. – 2023. – С. 10.

170. Blinov M.I. Magnetoresistance of $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ and $(\text{Co}_{84}\text{Nb}_{14}\text{Ta}_2)_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ Nanocomposites Below the Percolation Threshold in Pulsed Magnetic Fields / M.I. Blinov, M.A. Shakhov, V.V. Rylkov, E. Lähderanta, V.N. Prudnikov, S.N. Nikolaev, A.V. Sitnikov, A.B. Granovsky // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2019. – Vol. 469. – P. 155 – 160.

171. Исхаков Р.С. Ферромагнитный и Спин-волновой Резонансы в Трехслойных Обменно-связанных структурах NiFe/Cu/NiFe / Р.С. Исхаков, С.В. Столяр, Л.А. Чеканова, В.Ю. Яковчук, М.В. Чижик // Известия РАН. – 2011. – Т. 75. – № 2. – С. 197 – 199.