

На правах рукописи

**Уклеев Виктор Алексеевич**

**Исследование неоднородных магнитных плёнок и  
многослойных систем взаимодополняющими  
методами поверхностного рассеяния нейтронного  
и рентгеновского излучений**

Специальность 01.04.07,  
физика конденсированного состояния

**Автореферат**  
диссертации на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург — 2016

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук»

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор  
**Григорьев Сергей Валентинович**

Официальные оппоненты:

**Стогней Олег Владимирович,**  
доктор физико-математических наук, профессор,  
профессор ФГБОУ ВПО «Воронежский государственный технический университет»

**Набережнов Александр Алексеевич,**  
доктор физико-математических наук,  
Доцент ФГБУН «Физико-технический институт им.  
А.Ф. Иоффе» РАН

Ведущая организация: Международная межправительственная организация «Объединенный институт ядерных исследований»

Защита состоится 30 сентября 2016 г. в 15 часов на заседании диссертационного совета Д 002.269.01 на базе федерального государственного бюджетного учреждения высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук» по адресу: 194021 Санкт-Петербург, ул. Хлопина, д.8, корпус 3.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Академического университета и на сайте <http://www.spbau.ru> в разделе "Диссертационный совет".

Автореферат разослан " \_\_\_\_ " \_\_\_\_\_ 2016 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
Д 002.269.01, к.ф.-м.н.

Богданов Алексей Александрович

## Общая характеристика работы

Актуальность темы. В последние несколько десятилетий исследование физических свойств наноразмерных структур является одним из основных направлений физики конденсированного состояния. Высокий устойчивый интерес к наноструктурам обусловлен возможностью широкой модификации и принципиального изменения свойств материалов при переходе к нано масштабу вследствие усиливающегося влияния квантовых законов. Созданные благодаря развившимся к настоящему времени нанотехнологиям, новые наноразмерные магнитные материалы проявляют ряд уникальных свойств, которые уже нашли своё применение в практических приложениях. Объектом интенсивных экспериментальных и теоретических исследований является вопрос влияния состава и структуры наноразмерных объектов на их магнитные, магнитооптические и магнитотранспортные свойства.

Несмотря на большое количество экспериментальных данных, в настоящее время нет достаточной ясности в понимании физических процессов, происходящих в плёнках или слоях нанокompозитных материалов на основе магнитных гранул в диэлектрической матрице – металл-диэлектрические (МД) композиты или гранулированные плёнки (ГП). Значительную роль в данных объектах играют взаимодействия наночастиц между собой, с матрицей и с подложкой. В связи с этим актуальными оказываются экспериментальные методы, позволяющие получить представление о внутренней структуре таких материалов и особенностях магнитного взаимодействия в них. К таким методам можно отнести неразрушающие методы поверхностного рассеяния нейтронного и синхротронного излучений: малоуглового рассеяния в скользящей геометрии и рефлектометрии. Безусловным преимуществом синхротронного излучения перед любыми другими методами изучения структуры вещества является относительно высокая проникающая способность и крайне высокая интенсивность синхротронных пучков фотонов, что позволяет легко исследовать образцы малых объёмов, такие как тонкие магнитные плёнки. В свою очередь, методы нейтронного рассеяния, благодаря наличию у нейтронов собственного магнитного момента, позволяют исследовать магнитные свойства. Комплементарными к нейтронным методам являются интегральные методы исследования магнитных свойств, такие как магнитометрия на основе эффекта Керра и СКВИД магнитометрия. Таким образом, совокупность методов поверхностного рассеяния нейтронного и синхротронного излучений и магнитометрии являются эффективными при исследованиях наноструктур, как при технологической оценке качества, так и при исследовании свойств.

**Целью** данной работы является изучение структуры и магнитных свойств плёнок и многослойных структур, состоящих из ансамблей магнитных наночастиц в диэлектрических матрицах взаимодополняющими методами рассеяния синхротронного и нейтронного излучений, а также магнитометрии.

Для достижения поставленной цели решались следующие **задачи**:

1. Определить структуру и исследовать магнитные свойства гранулированных плёнок, состоящих из наночастиц кобальта в матрице оксида кремния  $\text{SiO}_2(\text{Co})$ , напылённых на полупроводниковые подложки GaAs или Si.
2. Исследовать влияние толщины и морфологии полупроводниковой прослойки на магнитные свойства неоднородных магнитных многослойных наносистем металл-диэлектрик / полупроводник  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si}]_{36}$  и  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ .

**Основные положения, выносимые на защиту:**

1. На интерфейсе плёнки, состоящей из гранул Co в матрице  $\text{SiO}_2$ , и подложки GaAs или Si образуется слой наночастиц Co с большими, чем в объёме плёнки, средними размерами и межчастичными расстояниями.
2. Магнитные свойства интерфейсного слоя плёнки  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на подложках GaAs и Si отличаются от свойств самой плёнки. Температура блокировки интерфейсного слоя плёнки  $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{GaAs}$  в нулевом поле составляет 336 К, в то время как для самой плёнки – 177 К. Намагниченность насыщения интерфейсного слоя наночастиц Co в плёнках  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на подложках GaAs и Si при комнатной температуре в три раза ниже намагниченности насыщения плёнки.
3. Толщина полупроводниковой прослойки определяет структуру и магнитные свойства металл-диэлектрических слоёв. При изменении толщины слоя полупроводника можно изменять намагниченность, температуру блокировки, магнитную анизотропию многослойной магнитной системы. Сплошной слой полупроводника формируется при толщинах слоя более 1 нм аморфного кремния в случае структуры  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si}]_{36}$  и углерода в случае  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ .

**Научная новизна:**

1. Впервые комбинация методов малоуглового рассеяния синхротронного излучения в скользящей геометрии и рефлектометрии поляризованных нейтронов использовалась для изучения гетероструктур гранулированная плёнка  $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{полупроводник}$  (GaAs, Si) и многослойных систем металл-диэлектрик / полупроводник.

2. Впервые показано, что происходит образование интерфейсного слоя наночастиц большего размера, чем в объёме плёнки в гетероструктурах гранулированная плёнка  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  / полупроводник (GaAs, Si).
3. Впервые установлена связь морфологии полупроводниковых слоёв и магнитных свойств многослойных неоднородных наноструктур металл-диэлектрик / полупроводник  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}]/\text{a-Si}]_{36}$  и  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{V}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ , которая заключается в изменении формы и размера магнитных наночастиц при изменении толщины полупроводниковой прослойки.

**Практическая значимость** работы определяется тем, что полученные результаты могут быть использованы при разработке сред для высокочувствительных сенсоров магнитного поля. Материалы, исследованные в работе перспективны для изготовления сред для хранения, записи и считывания информации.

**Достоверность** полученных результатов обеспечивается использованием в работе экспериментальных исследований современных и апробированных методик на высокоточных приборах и установках и воспроизводимостью результатов. Результаты не имеют внутренних противоречий и находятся в соответствии с результатами, полученными другими авторами.

**Апробация работы.** Основные результаты работы докладывались на российских и международных конференциях: 43-ая – 47-ая Зимние Школы ФКС ПИЯФ (2009 – 2013, Санкт-Петербург, Россия), 20th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (2009, Берлин, Германия), 18th International Conference on Magnetism (2009, Карлсруэ, Германия), Современная Нейтронография (2010, Дубна, Россия), New Opportunities for Research on Hard and Soft Matter Nanostructures using Neutron Reflectometry (2012, Берлин, Германия), 19th International Conference on Magnetism (2012, Бусан, Южная Корея), XXII – XXIII Собрание по использованию рассеяния нейтронов в исследованиях конденсированного состояния (2012, 2014, Санкт-Петербург, Россия), Joint European Magnetic Symposia (2013, Родос, Греция), 2nd Workshop on Ordering and Dynamics in Magnetic Nanostructures (2013, Уппсала, Швеция), МУРомец-2013 (2013, Гатчина, Россия), The 13th Surface X-ray and Neutron Scattering conference (2014, Гамбург, Германия).

**Личный вклад.** Автор принимал активное участие в методическом обеспечении экспериментов, проведении измерений, обсуждении и описании полученных результатов на всех этапах работы.

**Публикации.** Основные результаты по теме диссертации изложены в 18 печатных изданиях, 5 из которых изданы в журналах, рекомендованных ВАК, 12

— в тезисах докладов российских и международных школ и конференций, 1 – в журнале “Вестник Российского фонда фундаментальных исследований”.

**Объем и структура работы.** Диссертация состоит из введения, четырёх глав и заключения. Полный объем диссертации составляет 129 страниц с 58 рисунками и 3 таблицами. Список литературы содержит 87 наименований.

## Содержание работы

Во **введении** обосновывается актуальность исследований, проводимых в рамках данной диссертационной работы, формулируется цель, ставятся задачи работы, сформулированы научная новизна и практическая значимость представляемой работы.

**Первая глава** посвящена обзору литературы. В ней излагаются имеющиеся данные об особенностях структуры и магнитных свойств магнитных наночастиц, плёнок и многослойных систем на их основе, представлены технологии получения плёночных структур, содержащих магнитные наночастицы. На основании литературных данных обосновывается выбор объектов и методов исследования, формулируются поставленные задачи.

В качестве первой задачи предлагается исследование гранулированных плёнок на основе наночастиц кобальта в диэлектрической матрице оксида кремния, напылённые на полупроводниковые подложки из арсенида галлия и кремния. В работе [1] был продемонстрирован высокий показатель магнитосопротивления при инжекции электронов из плёнки  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  в полупроводник GaAs, этот эффект был назван Гигантским Инжекционным Магнитосопротивлением (ГИМС). Для более глубокого понимания природы данного эффекта и возможности улучшения характеристик приборов на его основе необходимо исследовать структуру ГП и интерфейса ГП / ПП.

В качестве второй задачи предлагается исследование связи морфологии полупроводниковых слоёв и магнитных свойств многослойных неоднородных наноструктур металл-диэлектрик / полупроводник  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}]/\text{a-Si}_{36}$  и  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ . Актуальность задачи обосновывается растущим интересом к МД нанокompозитам с улучшенными высокочастотными характеристиками. Такие параметры, как размер и форма магнитных наночастиц, их упорядочение, анизотропия определяют магнитные свойства этих систем. В недавних работах [2–4] предлагалось изменять магнитное взаимодействие между наночастицами композита при помощи введения полупроводниковых прослоек между слоями МД. Однако, в связи со сложностью объектов исследования, однозначно судить о существовании косвенного магнитного взаимодействия наночастиц через слои полупроводника не представляется возможным без деталь-

ного знания устройства системы МД / ПП. Задача состоит в исследовании структуры МД слоёв и её связи с морфологией прослоек аморфного полупроводника, а также исследование сопутствующих магнитных и проводящих свойств.

**Вторая глава** содержит описание основных экспериментальных методик, использованных в работе. Обсуждаются методы малоуглового рассеяния рентгеновского излучения в геометриях на прохождение (МУРР, или англ. SAXS от Small-angle X-ray scattering) и в скользящей геометрии (МУРРСГ, или англ. GISAXS от Grazing-incident small-angle X-ray scattering) и их различия; рефлектометрии поляризованных нейтронов; магнитометрии. Приводятся примеры их использования в литературе.

**Третья глава** посвящена основным экспериментальным результатам исследования неоднородных магнитных плёнок  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на подложках GaAs и Si. Объектами исследования были выбраны ГП  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на подложке GaAs, в которых наблюдается ГИМС при комнатной температуре, и  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на подложке Si, в которой эффект ГИМС незначителен [1, 5]. Исследование проводилось комбинацией взаимодополняющих методов малоуглового рассеяния синхротронного излучения в скользящей геометрии, рефлектометрии поляризованных нейтронов и СКВИД магнитометрии. Методом GISAXS было показано, что структура ГП состоит из двух слоёв как в случае GaAs, так и в случае Si подложки. Для образцов на обоих типах подложек на картах малоуглового рассеяния наблюдались максимумы интенсивности, соответствующие рассеянию от двух различных систем неоднородностей: широкое дифракционное гало, характерное для трёхмерного неупорядоченного ансамбля наночастиц и пики, характерные для монослоя наночастиц (Рис. 1). Характерная картина рассеяния изменялась для образца, толщина которого была больше глубины проникновения синхротронного излучения, для которого не наблюдалось пиков от монослоя частиц. На этом основании сделан вывод, что монослой частиц расположен на интерфейсе ГП / ПП. Межчастичные расстояния в интерфейсном слое составляют порядка  $l_2 = 30$  нм, в то время как в объёмной части ГП –  $l_1 = 7$  нм.

Метод рефлектометрии поляризованных нейтронов подтвердил наличие интерфейсного слоя в образцах на GaAs и Si подложках (Рис.2). Кроме того, по зависимости интенсивности отражения нейтронов с различной поляризацией в зависимости от величины приложенного к образцам магнитного поля были получены профили распределения магнитного момента в плёнке. Показано, что объёмный и интерфейсный слои плёнок имеют различную магнитную восприимчивость. Интегральные магнитные свойства образцов были изучены при помощи СКВИД магнитометрии. Измерены петли намагниченности в зависимости от величины магнитного поля в диапазоне  $-5 < B < 5$  Т и от температуры  $4 < T < 350$  К. Интерфейсный слой наночастиц Co, обнаруженный методами

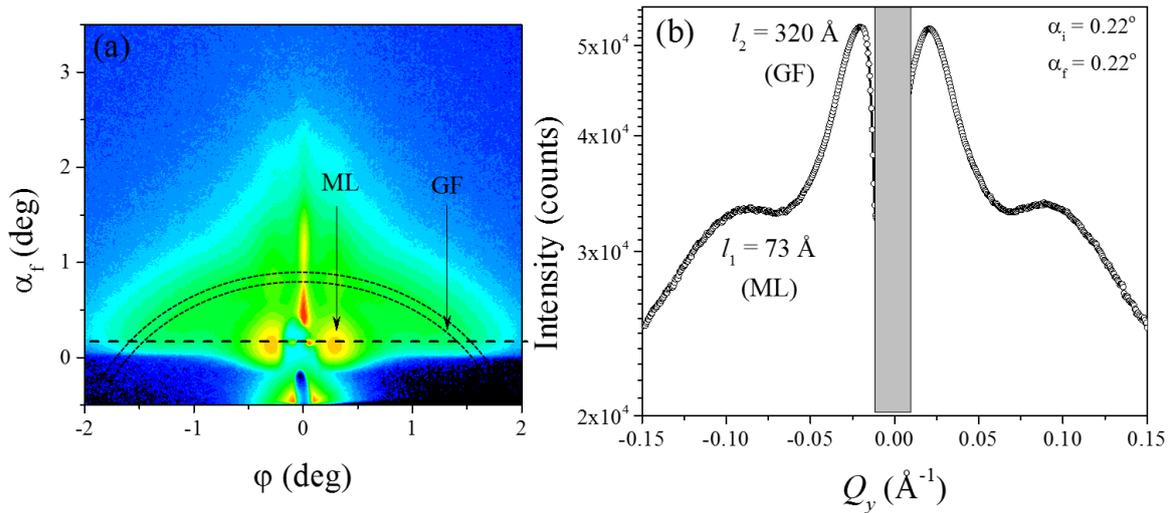


Рисунок 1 — (а) Двумерная карта малоуглового рассеяния синхротронного излучения в скользящей геометрии для образца  $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$  толщиной ГП 90 нм. Точечной линией выделена часть дифракционного кольца, возникающего из-за рассеяния на трехмерной структуре частиц кобальта в основном слое плёнки (GF). Стрелками показано рассеяние на монослое частиц кобальта находящихся в интерфейсном слое (ML). (b) Срез двумерной карты распределения интенсивности GISAXS вдоль линии  $\alpha_f = 0.22^\circ$ .

GISAXS и нейтронной рефлектометрии имеет магнитные свойства, отличные от "объёмного" слоя плёнки. Мы связываем наличие двух структурных слоёв ГП (объёмного и интерфейсного) с двумя температурами блокировки наночастиц, обнаруженными методом СКВИД магнитометрии в образцах  $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{GaAs}$ . В зависимости от величины приложенного поля, кривые намагниченности плёнок имеют особенности, связанные с наличием двух различных магнитных подсистем. Наночастицы с характерным межчастичным расстоянием в 7 нм намагничиваются до насыщения в относительно слабых полях  $0 < B < 0.5 \text{ Т}$ . Необходимо, при этом, заметить, что намагниченность насыщения гранулированной плёнки, полученная методом рефлектометрии поляризованных нейтронов, в пять раз меньше намагниченности насыщения объёмного кобальта, и его насыщение наступает в полях на порядок меньших, чем те, в которых наблюдается эффект ГИМС. Таким образом, для выяснения природы эффекта нужно искать часть магнитной системы, магнитные свойства которой изменяются в полях от 1 до 2 Т для выяснения природы эффекта. Этой частью, по-видимому, является ансамбль наночастиц на интерфейсе, которой приписывается гистерезисное поведение в полях 0.8 – 2 Т. Это может быть связано с проявлением осциллирующего взаимодействия РККИ-типа посредством электронов проводимости приповерхностного слоя ПП. Так, если расстояние между частицами интерфейсного слоя соответствует положительному интегралу РККИ обменного взаимодействия, то

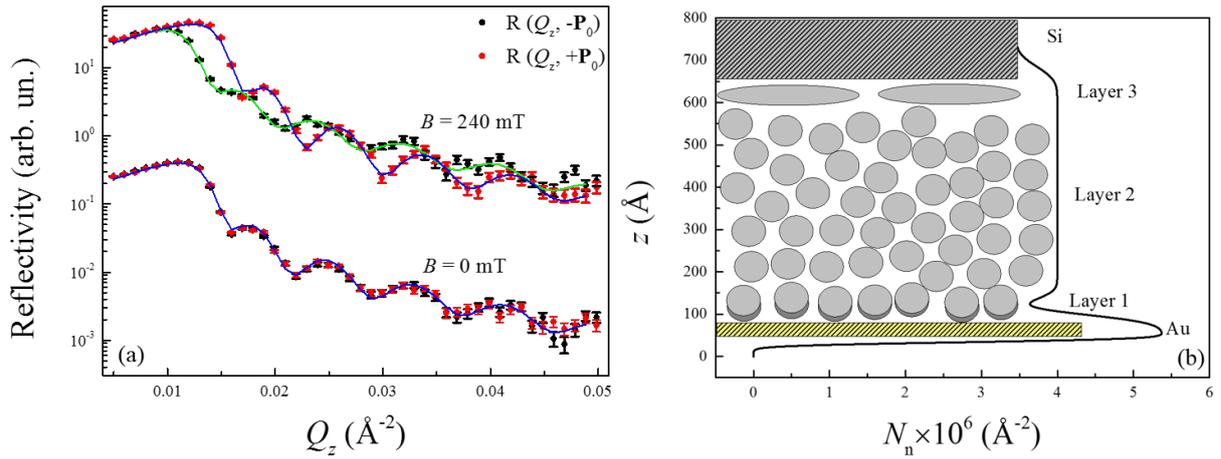


Рисунок 2 — (а) Экспериментальные (символы) и рассчитанные (сплошные линии) кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов для образца  $\text{SiO}_2(54 \text{ at.}\% \text{ Co}) / \text{Si}$  в полях  $B = 0$  и  $B = 240$  мТ при комнатной температуре. (б) Профиль ядерной длины рассеяния  $N_m$  образца  $\text{SiO}_2(54 \text{ at.}\% \text{ Co}) / \text{Si}$ , полученный аппроксимацией экспериментальных данных нейтронной рефлектометрии и модель гранулированной плёнки, полученная на основе данных GISAXS.

частицы стремятся к антиферромагнитному упорядочению, что приводит к увеличению коэрцитивной силы слоя. С другой стороны, этот эффект может также быть связан с большим размером и анизотропией формы магнитных наночастиц. Толщина интерфейсного слоя плёнки определяется физико-химическими процессами напыления кобальта и  $\text{SiO}_2$  на полупроводниковую подложку на ранней стадии роста. Таким образом, толщина этого интерфейсного слоя одинакова для всех образцов данного типа, как и его вклад в интегральную намагниченность.

Экспериментальные данные GISAXS однозначно показывают, что в гетероструктуре  $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{Si}$  также сосуществуют две подсистемы наночастиц с различными средними межчастичными расстояниями  $l_1 = 7$  нм и  $l_2 = 32$  нм в объёме плёнки и на интерфейсе ГП / Si, соответственно. Рефлектометрия поляризованных нейтронов (Рис. 2) подтверждает наличие интерфейсного слоя. Полученные в данной работе структурные и магнитные свойства гетероструктуры  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на кремниевой подложке во многом принципиально повторяют свойства  $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{GaAs}$ : наличие интерфейсного слоя, межчастичные расстояния, значения намагниченности объёмного и интерфейсного слоёв. В то же время, величина эффекта ГИМС для этих систем различается на 5 порядков. Следовательно, можно заключить, что природа явления ГИМС в большей степени зависит от эффектов, связанных с электронной структурой поверхности ПП на границе ГП / подложка, чем от интегральных магнитных характеристик и структуры плёнки. Данный вывод согласуется с недавними оптическими экспериментами и теоретическими расчётами [5, 6]. Результаты экспериментов показывают важность

комбинирования локальных и интегральных методов исследования структуры и магнитных свойств нанобъектов.

**В четвёртой главе** представлены экспериментальные результаты и обсуждение исследования многослойных магнитных структур  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$  и  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ .

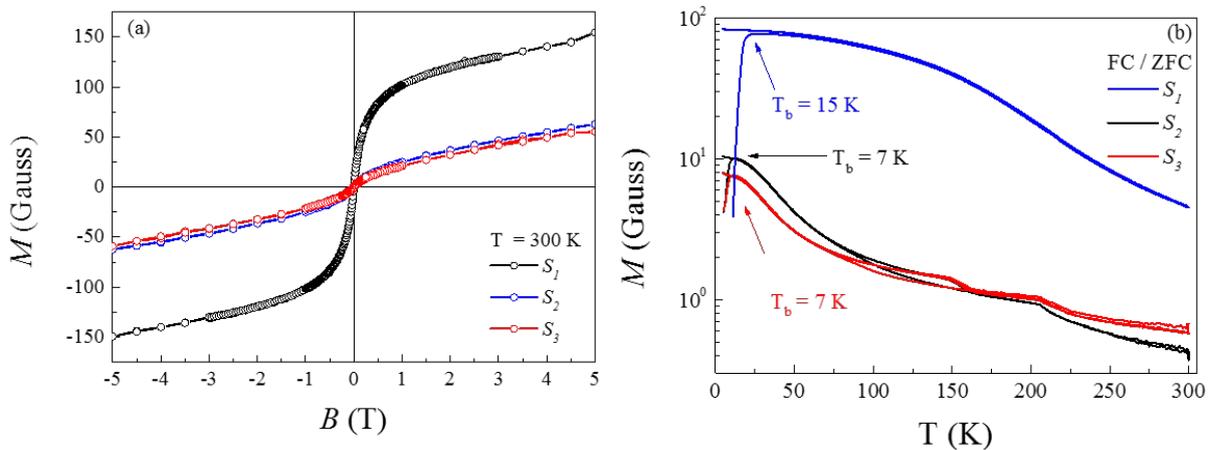


Рисунок 3 — (а) Зависимость намагниченности образцов  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$  с различной толщиной углеродной прослойки от приложенного поля при комнатной температуре  $T = 300$  К. (б) Температурная зависимость намагниченности образцов  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$  в циклах FC и ZFC.

Были изучены три образца многослойной структуры  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$  с различными номинальными толщинами полупроводникового слоя (0.6 нм – образец  $S_1$ ; 1.4 нм – образец  $S_2$ ; 2.3 нм – образец  $S_3$ ) и концентрацией 35 ат. %, что ниже порога перколяции металла. Петли намагниченности наноструктур были получены методом магнитооптического эффекта Керра при приложении магнитного поля  $B = -850 \dots 850$  мТл в плоскости и перпендикулярно плоскости образцов. Показано, что для всех образцов лёгкая ось лежит в плоскости плёнки, и намагниченность образца  $S_2$  минимальна среди измеренных образцов. Исследования транспортных свойств четырёхконтактным методом образцов показали, что на зависимости электрического сопротивления, измеренного в плоскости образцов, от толщины кремниевого слоя наблюдается минимум, соответствующий наименее намагниченному образцу  $S_2$  с толщиной ПП слоя 0.4 нм.

Методом СКВИД магнитометрии были исследованы магнитные свойства многослойных образцов  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$  с различными толщинами углеродной полупроводниковой прослойки C (0.4 нм – образец  $S_1$ ; 1.7 нм – образец  $S_2$ ; 1.8 нм – образец  $S_3$ ) (Рис. 3). Образцы не демонстрируют насыщения вплоть до максимальных приложенных полей  $B = 5$  Т. При комнатной температуре  $T = 300$  К коэрцитивная сила очень мала. Совокупность этих фактов

позволяет судить о том, что образцы находятся в суперпарамагнитном состоянии. Следует отметить, что намагниченность образца с наименьшей толщиной полупроводниковой прослойки в несколько раз выше намагниченности остальных образцов. Кроме того, были исследованы температурные зависимости FC / ZFC намагниченности от температуры  $M(T)$ .

Морфология пленок была исследована методом малоуглового рассеяния синхротронного излучения в скользящей геометрии. Характерной особенностью карт рассеяния GISAXS для всех образцов серии  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$  является наличие как минимум одного яркого Брэгговского пика, что подтверждает периодическое упорядочение МД и ПП. Из положений пиков, можно определить период структуры. Кроме того для образцов  $S_2$  и  $S_3$  обнаружены пики на незеркальных сечениях, смещённые относительно пиков на линии зеркального отражения, что указывает на латеральное смещение соседних МД слоёв друг относительно друга на расстояние порядка размера одной гранулы. На карте рассеяния для образца  $S_1$  кроме Брэгговского пика на линии зеркального отражения и пиков Йонеды присутствует также дифракционное кольцо, характерное для рассеяния на трёхмерной изотропной системе металлических гранул.

Измерения GISAXS проводились на образцах  $S_1$ ,  $S_2$ ,  $S_3$  серии  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{V}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ , измеренных на СКВИД магнетометре. Общей особенностью распределения интенсивности на двумерных картах рассеяния синхротронного излучения является наличие пиков Брэгговского отражения, соответствующих периодическому упорядочению МД и ПП слоёв (Рис.4). На характерных срезах для образца  $S_1$  наблюдается несколько широких пиков, соответствующих периодической структуре с периодом  $\Lambda = 4.8$  нм. Для образцов  $S_2$  и  $S_3$  наблюдаются гораздо более ярко выраженные Брэгговские пики, соответствующие периодичности многослойной структуры  $\Lambda = 3.6$  нм и  $\Lambda = 3.7$ . Таким образом, используя толщину ПП слоя  $h_c$ , известную из времени напыления, можно получить толщину МД слоя. Как было замечено из экспериментальных карт рассеяния GISAXS и их срезов, положения пиков корреляционной функции практически не меняется от образца к образцу. Следовательно, практически не меняется и распределение частиц в плоскости образца в реальном пространстве.

Измерение намагниченности индивидуальных МД слоёв образцов серии  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$  проводилось методом рефлектометрии поляризованных нейтронов. С приложением магнитного поля для образцов  $S_1$  и  $S_3$  наблюдалось расщепление кривых отражения нейтронов с противоположной поляризацией, свидетельствующее о появлении ненулевого магнитного момента МД слоёв. МД слои образца  $S_2$ , напротив, практически не намагничивается в приложенном поле. Обнаруженное поведение интенсивности уже было показано в многослойных структурах [7], подобных исследованной здесь, и связано

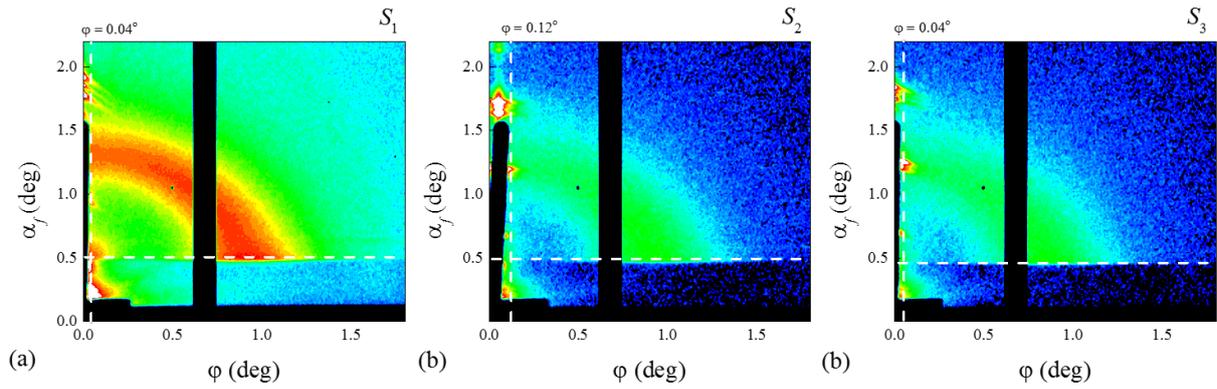


Рисунок 4 — Карты рассеяния GISAXS образцов  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$  (a)  $S_1$  (b)  $S_2$  и (c)  $S_3$ .

с неоднородным распределением средней намагниченности в пределах индивидуального МД слоя, а именно наличием в каждом МД слое магнито-активной центральной части и магнитно-мёртвых частей на интерфейсах с ПП. Модельное представление структуры образцов  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$ , составленное на основе данных GISAXS, представлено на Рис. 5. Благодаря информации о форме и размере частиц и толщине слоёв стало возможным объяснение магнитных и проводящих свойств систем с различной толщиной прослойки из аморфного кремния. Можно заключить, что морфология гетерогенной слоистой структуры  $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$  является фактором, определяющим ее магнитные и проводящие свойства, а комбинация методов магнитооптического эффекта Керра, рефлектометрии поляризованных нейтронов и GISAXS – эффективным инструментом для всестороннего исследования многослойных магнитных наноструктур.

На основе экспериментов по GISAXS с образцами серии  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$  удалось реконструировать трёхмерное расположение наночастиц аморфного магнитного сплава в реальном пространстве. Среднее латеральное расстояние и, следовательно, размер наночастиц в плоскости изменяется от образца  $S_1$  к образцам  $S_2$  и  $S_3$  с 1.65 до 1.85 нм. Тем не менее, вертикальный размер, а, следовательно, объём наночастиц в два раза больше у  $S_1$  по сравнению с  $S_2$  и  $S_3$ . С другой стороны, данные СКВИД также демонстрируют существенные изменения в магнитных свойствах многослойных систем. Температура блокировки для невзаимодействующих суперпарамагнитных наночастиц задаётся формулой  $T_b = \frac{KV}{25k_B}$ , где  $K$  – константа анизотропии,  $V$  – объём наночастицы,  $k_B$  – постоянная Больцмана. Можно оценить относительную разницу температур блокировки для наших образцов:  $T_{b_1}/T_{b_2} = 1.97$  и  $T_{b_1}/T_{b_3} = 2.1$ . В то время как экспериментально определённые значения

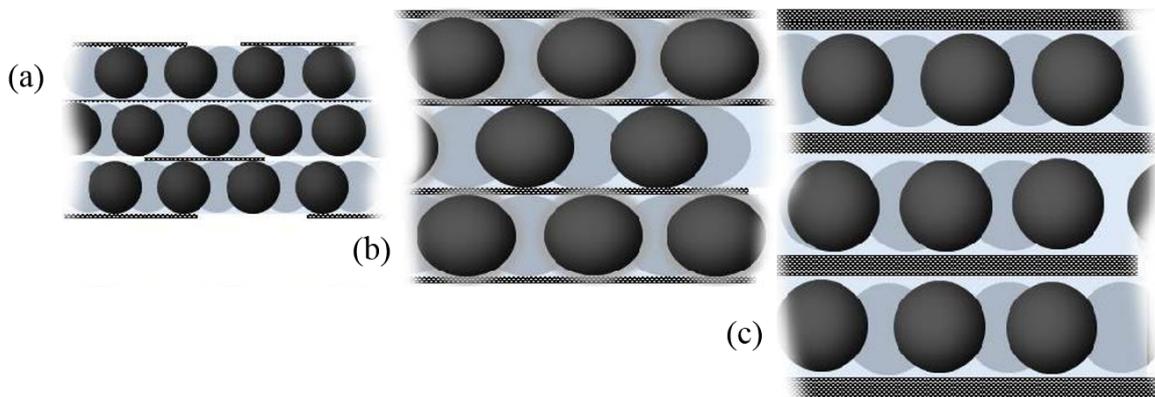


Рисунок 5 — Масштабная модель структуры для трех исследованных образцов, полученные в результате комбинации экспериментов по нейтронной рефлектометрии и GISAXS: (a)  $S_1$ , (b)  $S_2$  и (c)  $S_3$ .

методом СКВИД магнитометрии дают отношения  $T_{b_1}/T_{b_2} = T_{b_1}/T_{b_3} = 2.1$ . Таким образом, расчётные данные весьма близки к экспериментальным результатам.

Таким образом, можно сделать заключение о том, что, морфология слоёв полупроводника (углерода и аморфного кремния) определяет структуру и магнитные свойства слоёв наночастиц. В образцах  $[(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{34}(SiO_2)_{66}]/[C]_{47}$ , изменяя толщину слоя C с 0.4 нм до 1.8 нм можно изменять объём магнитных наночастиц, и, как следствие, величину их намагниченности и характерную температуру блокировки. Очевидно, что магнитная анизотропия наночастиц задаётся магнитокристаллической анизотропией материала и анизотропией формы частицы. Таким образом, этот параметр также можно варьировать через морфологию ПП прослойки. Морфология МД слоёв зависит от физико-химических процессов роста на различных поверхностях в зависимости от таких параметров, как подвижность атомов на поверхности, смачивание, температура поверхности роста. При гетерогенном росте МД слоя на поверхности аморфного полупроводника горизонтальный диаметр частиц превосходит вертикальный, то есть они имеют форму сплюснутого на полюсах эллипсоида. При гетерогенном росте МД / МД форма частиц близка к сферической. Стоит отметить, что при создании образцов не удастся избежать образования химической деградации магнитных свойств на интерфейсах из-за образования оксидов и силицидов щелочных металлов.

В заключении приведены основные результаты работы:

1. На основе анализа экспериментальных данных малоуглового рассеяния рентгеновских лучей в скользящей геометрии, рефлектометрии поляризованных нейтронов и магнитометрии показано существование структурной неоднородности гранулированных плёнок  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на интерфейсе с полупроводниковой подложкой GaAs и Si.
2. Исследованы температурные и полевые зависимости намагниченности гранулированных плёнок  $\text{SiO}_2(\text{Co})$  на GaAs и Si подложках, установлено, что интерфейсный и объёмный слои плёнки имеют различные температуры блокировки, намагниченность и поле насыщения.
3. Проведён сравнительный анализ электропроводящих, магнитных, и структурных свойств многослойных наноструктур металл-диэлектрик / полупроводник при различных толщинах прослойки полупроводник. Обнаружено изменение электрического сопротивления многослойных структур по мере образования ПП прослойки, а также изменение объёма наночастиц, которые приводят к изменению таких магнитных свойств как намагниченность насыщения и температура блокировки.
4. Показана эффективность использования взаимодополняющих методов поверхностного рассеяния нейтронного и синхротронного излучений для изучения структуры и магнитных свойств неоднородных наноструктур.

Полученные результаты проливают свет на особенности формирования слоёв металлических магнитных наночастиц на поверхности полупроводников. Экспериментальные исследования показывают, что технологии напыления подобных наноструктур пока далеки от совершенства и должны продолжать своё развитие для дальнейших применений в нанoeлектронике и спинтронике. Однако, помимо создания технологии производства магнитных наноструктур, в России необходимо также создание и поддержка новых источников нейтронного и синхротронного излучений для их исследования и совершенствования.

## Список литературы

- 1 Луцев Л. В. Гигантское инжекционное магнитосопротивление в гетероструктурах арсенид галлия/гранулированная пленка с наноразмерными включениями кобальта / Л. В. Луцев, А. И. Стогний, Н. Н. Новицкий // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2005. — Т. 81, № 10. — С. 636–641.

- 2 Золотухин И.В. Нанокompозитные структуры на пути в наноэлектронику / И.В. Золотухин, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников // Природа. — 2006. — № 1. — С. 11–19.
- 3 Электрические и магнитные свойства мультислойных структур [(CoFeZr) x (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)/(α-SiH)] n / А.В. Иванов, Ю.Е. Калинин, В.Н. Нечаев [и др.] // Физика твердого тела. — 2009. — Т. 51, № 12.
- 4 Multilayer nanogranular films (Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>)<sub>50</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>50</sub>/α-Si:H and (Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>)<sub>50</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>50</sub>/SiO<sub>2</sub>: Magnetic properties / S.V. Komogortsev, E.A. Denisova, R.S. Iskhakov [и др.] // Journal of Applied Physics. — 2013. — Т. 113, № 17. — С. 17C105.
- 5 Lutsev L.V. Giant magnetoresistance in semiconductor/granular film heterostructures with cobalt nanoparticles / L.V. Lutsev, A.I. Stognij, N.N. Novitskii // Physical Review B. — 2009. — Т. 80, № 18. — С. 184423.
- 6 Effect of magnetic field enhancement of the photocurrent in ferromagnetic metal-dielectric heterostructures SiO<sub>2</sub>(Co)/GaAs / V.V. Pavlov, L.V. Lutsev, P.A. Usachev [и др.] // Applied Physics Letters. — 2015. — Т. 106, № 15. — С. 152404.
- 7 Study of the [(Co<sub>45</sub>Fe<sub>45</sub>Zr<sub>10</sub>)x(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>100-x</sub>/a-Si:H]<sub>m</sub> multilayer nanostructure by polarized neutron reflectometry / E.A. Dyadkina, S.V. Grigoriev, D. Lott [и др.] // Physica B: Condensed Matter. — 2011. — Т. 406, № 12. — С. 2397–2400.

## **Публикации автора по теме диссертации**

- 1 Н.А. Григорьева. Изучение гетероструктуры SiO<sub>2</sub>(Co)/GaAs методами поверхностного рассеяния синхротронного излучения / Н.А. Григорьева, А.А. Воробьев, В.А. Уклеев [и др.] // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2010. — Т. 92, №11. — С. 847–853.
- 2 В.А. Уклеев. Исследование интерфейсов гетероструктуры Au/SiO<sub>2</sub>+Co(65 ат.%) / GaAs методом рефлектометрии поляризованных нейтронов / В.А. Уклеев, Н.А. Григорьева, А.А. Воробьев [и др.] // Письма о физике элементарных частиц и атомного ядра. — 2011. — Т. 8, №10. — С. 38–40.
- 3 V.A. Ukleev. Magnetic properties of the SiO<sub>2</sub>(Co)/GaAs interface: Polarized neutron reflectometry and SQUID magnetometry / V.A. Ukleev, N.A. Grigoryeva, E.A. Dyadkina [и др.] // Physical Review B. — 2012. — Т. 86, №13. — С. 134424.

- 4 Е.А. Дядькина. 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. Воробьёв, В.А. Уклеев [и др.] // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2014. – Т. 145, №3. – С. 472–480.
- 5 V. Ukleev. Morphology and magnetic properties of nanocomposite magnetic multilayers  $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{C}]_{47}$  / V. Ukleev, E. Dyadkina, A. Vorobiev [и др.] // Journal of Non-Crystalline Solids. – 2016. – Т. 432, Ч. В. – С. 499–504.

Автор работы выражает благодарность своим коллегам Е. А. Дядькиной, О. В. Геращенко (ПИЯФ) за проведение экспериментов по рефлектометрии поляризованных нейтронов и электрического сопротивления и обсуждение их результатов; Н. А. Григорьевой, А. А. Мистонову (СПбГУ) за проведение экспериментов и обсуждение результатов по рефлектометрии поляризованных нейтронов и СКВИД магнитометрии; Л. В. Луцеву (ФТИ им. Иоффе) за обсуждение результатов исследований образцов  $\text{SiO}_2(\text{Co})$ ; В. В. Фёдорову (ФТИ им. Иоффе) за проведение измерений атомно-силовой микроскопии на образцах; А. В. Ситникову, Ю. Е. Калинину (ВГТУ) за предоставленные образцы многослойных структур; А. И. Стогнию, Н. В. Новицкому (НПЦ НАН Беларуси по материаловедению) за предоставленные образцы гранулированных плёнок; Л. Карон (TU Delft) за проведение измерений СКВИД магнитометрии; Д. Лотту (HZG) за помощь в проведении экспериментов по рефлектометрии поляризованных нейтронов; О. Коновалову (ESRF) за помощь в проведении GISAXS экспериментов; Г.-К. Паллссону (Uppsala University) за помощь в освоении программного пакета для обработки данных нейтронной рефлектометрии; Ф. Магнусу (Uppsala University), Б. Хьёрварссону (Uppsala University) за поддержку при проведении экспериментов по рентгеновской рефлектометрии и атомно-силовой микроскопии; А. Воробьёву (Uppsala University) за помощь в проведении GISAXS экспериментов и обсуждении результатов, а так же организациям European synchrotron radiation facility, Helmholtz-Zentrum Geesthaht, Institut Laue-Langevin, Technische Universität Braunschweig, Delft University of Technology, Uppsala University за предоставленные возможности проведения экспериментов. Работы выполнялась при финансовой поддержке Российского Фонда Фундаментальных Исследований и Swedish Institute. Отдельная благодарность автора выражается преподавателям ФМЛ №30 за пробуждение интереса к науке.