

Федеральное государственное бюджетное учреждение
высшего образования и науки
«Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический
университет Российской академии наук»

На правах рукописи
УДК 537.9

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»

Диссертация на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
Д. ф.-м. н., профессор
Григорьев С.В.

Санкт-Петербург – 2016

Содержание

Введение	5
1 Магнитные наноструктуры	9
1.1 Магнитный момент	9
1.2 Магнитные слоистые структуры	11
1.3 Гранулированные наноструктуры и наночастицы	12
1.4 Многослойные наноструктуры металл-диэлектрик / полупроводник	24
1.5 Получение гранулированных наноструктур	30
1.6 Получение многослойных наноструктур металл-диэлектрик / полупроводник	32
2 Методы исследования слоистых наноструктур	34
2.1 Поверхностное рассеяние рентгеновских лучей в скользящей геометрии	34
2.1.1 Синхротронное излучение	34
2.1.2 Малоугловое рассеяние рентгеновских лучей	36
2.1.3 Малоугловое рассеяние рентгеновских лучей в скользящей геометрии	37
2.1.4 Примеры использования малоуглового рассеяния в скользящей геометрии	41
2.2 Нейтронная рефлектометрия	45
2.2.1 Нейтронное излучение	45
2.2.2 Взаимодействие нейтронного излучения с веществом . .	47
2.2.3 Рефлектометрия поляризованных нейтронов	48
2.2.4 Примеры	53
2.3 Магнитометрия	55

3	Исследование гранулированных магнитных плёнок $\text{SiO}_2(\text{Co})$	57
3.1	GISAXS	57
3.1.1	GISAXS на ID10 ESRF	57
3.1.2	Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на GaAs	58
3.1.3	Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на Si	62
3.2	SQUID	63
3.2.1	SQUID магнитометрия	63
3.2.2	Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на GaAs	65
3.2.3	Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на Si	67
3.3	Рефлектометрия поляризованных нейтронов	68
3.3.1	Экспериментальные установки PNR и ADAM	68
3.3.2	Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на GaAs	72
3.3.3	Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на Si	77
3.4	Обсуждение результатов	78
3.4.1	Гранулированные плёнки $\text{SiO}_2(\text{Co})$ / GaAs	78
3.4.2	Неоднородные плёнки $\text{SiO}_2(\text{Co})$ / Si	82
3.4.3	Обобщение результатов	82
4	Многослойные неоднородные магнитные наноструктуры	84
4.1	SQUID и MOKE магнитометрия, электрическое сопротивление	84
4.1.1	Многослойные наноструктуры $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$	84
4.1.2	Многослойные наноструктуры $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$	86
4.2	GISAXS	90
4.2.1	Многослойные наноструктуры $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$	90
4.2.2	Многослойные наноструктуры $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$	97
4.3	Рефлектометрия поляризованных нейтронов	101
4.4	Обсуждение результатов	104
4.4.1	Многослойные наноструктуры металл-диэлектрик / аморфный кремний	104

4.4.2	Многослойные наноструктуры металл-диэлектрик / углерод	106
4.4.3	Обобщение результатов	107
	Заключение	109
	Список рисунков	111
	Список таблиц	119
	Литература	120

Введение

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 оценки 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 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 $\text{SiO}_2(\text{Co}) /$ 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 $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$, 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

высококочувствительных 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 Совецание 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.

Глава 1

Магнитные наноструктуры

Магнетизм и магнитные явления известны человечеству уже более 4 тыс. лет. Одно из первых, отражённых в летописях использование компаса относится к китайскому императору Хуан-Ди [1]. Создание этого прибора, а впоследствии и многих других, стало возможным благодаря свойствам магнитных твёрдых тел. Впоследствии, с изучением природы магнитных явлений область их применения существенно расширилась. Благодаря изобретению новых методик получения искусственных материалов на сегодняшний момент активно исследуются магнитные структуры пониженной размерности: двумерные (магнитные плёнки, слои, многослойные структуры, и т.д.), одномерные (магнитные нанонити) и нульмерные (наночастицы).

1.1 Магнитный момент

Фундаментальным объектом в магнетизме является магнитный момент. В классической теории электромагнетизма он определяется рамки площадью dS с текущим по ней током силой I :

$$d\mu = IdS. \quad (1.1)$$

В квантовой механике магнитный момент является следствием наличия у заряженной частицы орбитального момента и спина. Тогда магнитный момент одной частицы со спином S , массой m и зарядом q определяется следующим образом:

$$\mu = \frac{g_s q}{2m} S, \quad (1.2)$$

где g_s или g-фактор. Для классической частицы $g_s = 1$, для свободных квантовых частиц с ненулевым спином $g_s = 2$. Для реальных частиц (или квазичастиц) экспериментально определённое значение g-фактора может отличаться от 1 и 2 в зависимости от свойств частицы и её окружения [2].

Магнитные твёрдые тела состоят из множества атомов, имеющих магнитные моменты. Векторная величина намагниченности \mathbf{M} определяется как магнитный момент на единицу объёма. Как правило, \mathbf{M} полагается непрерывной величиной и не рассматривается как дискретный набор магнитных моментов отдельных атомов. Понятие намагниченности определено только в веществе, то есть в вакууме магнитное поле описывается векторными полями индукции \mathbf{B} и напряжённости \mathbf{H} :

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}, \quad (1.3)$$

где $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ (СИ) – магнитная постоянная (магнитная проницаемость вакуума).

В данное соотношение может нарушаться, и в таком случае, направление индукции магнитного поля может не совпадать с напряжённостью:

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}). \quad (1.4)$$

Величина, связывающая напряжённость магнитного поля и намагниченность называется магнитной восприимчивостью вещества и определяется как $\chi = dM/dH$. В первом приближении твёрдые тела делят на ферромагнетики, ферримагнетики, парамагнетики и диамагнетики.

В наноразмерных объектах сочетаются явления, описываемые как в рамках классической электродинамики, так и квантовые эффекты, и именно это делает их особенно интересными для изучения.

1.2 Магнитные слоистые структуры

Исследование магнитных слоистых структур (плёнок) является перспективным направлением как с точки зрения решения фундаментальных проблем физики магнитных явлений, так и практических приложений. Например, изучение тонких плёнок существенно расширило представления о физической природе анизотропии ферромагнетиков, позволило выявить и исследовать разнообразные процессы перемангничивания, обнаружить новые физические явления. Одно из таких явлений, нашедшее практическое приложение – эффект гигантского магнитосопротивления, открытие которого привело к революции в производстве жёстких дисков. Так же магнитные слоистые структуры находят применение в создании сред хранения информации (магнитооптическая запись) и оперативной памяти (MRAM – Magnetic Random Access Memory). Запоминающие устройства должны обеспечивать надёжное и длительное хранение информации, высокую скорость доступа, низкую стоимость хранения единицы информации, высокую плотность и скорость записи. Чтобы отвечать этим требованиям, плёнки должны обладать вполне определенным набором структурных и магнитных характеристик. Для того, чтобы заложить в слоистую структуру определённый набор свойств необходимо точно задать её структуру и морфологию. Именно связь структуры и морфологии слоистых систем и их магнитных свойств на настоящий момент исследуются особенно активно и являются главной темой данной диссертации.

Существует множество способов получения плёнок магнитных материалов: термическое испарение материала пленки в вакууме; катодное распыление; магнетронное распыление; ионно-плазменное распыление; электролитическое осаждение; молекулярно-лучевая эпитаксия; Лэнгмюровская самоорганизация; спин-коатинг. Выбор метода зависит от задачи и доступности оборудования. В качестве магнитного материала, в зависимости от задачи, выступают переходные металлы Co, Ni, Fe, редкоземельные металлы Dy, Ho, Eu, Er, Tb и т.д., их различные сочетания и сплавы. Для получения аморфных сплавов используются аморфизаторы на основе небольшого количества лёгких элементов, например, Zr и В. В

настоящее время, благодаря высокому значению намагниченности насыщения и малой коэрцитивной силе, одними из наиболее используемых аморфных магнитно-мягких сплавов являются сплавы на основе CoFeZr и CoFeB.

1.3 Гранулированные наноструктуры и наночастицы

Для сочетания свойств, присущих как двумерным, так и одномерным магнитным объектам, возможно создание композитных наноструктур – гранулированных плёнок и многослойных структур, состоящих из массивов взаимодействующих магнитных наночастиц. Эффективный магнитный момент наночастицы определяется её объёмом. В результате конкуренции обменного взаимодействия внутри ферромагнитного материала и стремления минимизировать размагничивающее поле вокруг себя, образец ферромагнетика с одноосной анизотропией, объёмом, превышающим некоторое критическое значение V_{cr} , разбивается на магнитные домены. Форма доменов определяется множеством параметров, таких как анизотропия, величина обменного взаимодействия, форма образца. Каждый домен имеет вектор намагниченности вдоль оси анизотропии (лёгкой магнитной оси) и эти оси имеют различные направления. Однако, формирование доменной структуры становится энергетически невыгодным, когда объём ферромагнитного образца становится меньше некоторого критического значения V_{cr} ; в этом случае ферромагнитная частица становится однодоменной с моментом, ориентированным вдоль оси легкого намагничивания. Это направление определяется как анизотропными свойствами материала (которые, в свою очередь, определяются кристаллическим полем – особенностями гибридизации электронных оболочек атомов), так и формой самой частицы [3]. Критический размер однодоменного состояния определяется размагничивающим полем и обменным взаимодействием в системе, а именно чем сильнее обменное взаимодействие в ферромагнитном материале, там меньший размер частиц V_{cr} соответствует однодоменному состоянию.

При конечных температурах существуют тепловые флуктуации магнитных моментов, которые могут переключать направление магнитного момента от одного направления лёгкой оси к другому, по аналогии с ионами в идеальном парамагнетике. Для переключения направления намагниченности одной однодоменной частицы объёмом V необходимо затратить энергию ΔE , превышающую величину энергии анизотропии, которая, в свою очередь, обусловлена кристаллическим полем материала и формой частицы. Уменьшение размера позволяет уменьшить величину потенциального барьера и приводит к флуктуации намагниченности однодоменной частицы от одного направления лёгкой оси к другому. Вероятность таких термических флуктуаций пропорциональна отношению $p \sim \exp(\Delta E/kT)$. Такое поведение магнитного момента однодоменной частицы похоже на поведение идеального объёмного парамагнетика, но отличается тем, что суммарный эффективный момент частицы представляет собой геометрическую сумму магнитных моментов входящих в неё атомов, число которых, в свою очередь, пропорционально объёму частицы. Одна наноразмерная частица ($1 \text{ нм}^3 = 1000 \text{ \AA}^3$) может быть вмещать от нескольких сотен до несколько тысяч атомов. В связи с этим, для описания магнитных явлений одиночных наночастиц и их ансамблей применяется термин "суперпарамагнетизм", впервые введённый Луи Неелем [4].

Как уже отмечалось, характер намагничивания ансамбля изотропных монодисперсных наночастиц ферромагнитного материала подобен намагничиванию системы парамагнитных ионов с необычайно большим значением спина и, в простейшем случае, может быть описан функцией Ланжевена (Рис. 1.1):

$$M(H) = n\mu L\left(\frac{\mu_0\mu H}{k_b T}\right), L(x) = 1/\tanh(x) - 1/x, \quad (1.5)$$

где n – число частиц, μ – магнитный момент одной наночастицы, H – величина напряжённости приложенного магнитного поля, k_b – постоянная Больцмана, T – температура. Ансамбли изотропных частиц, подчиняющихся закону Ланжевена, называют ансамблями ланжевенских частиц. Данная модель хорошо описывает ансамбли высокосимметричных наночастиц из

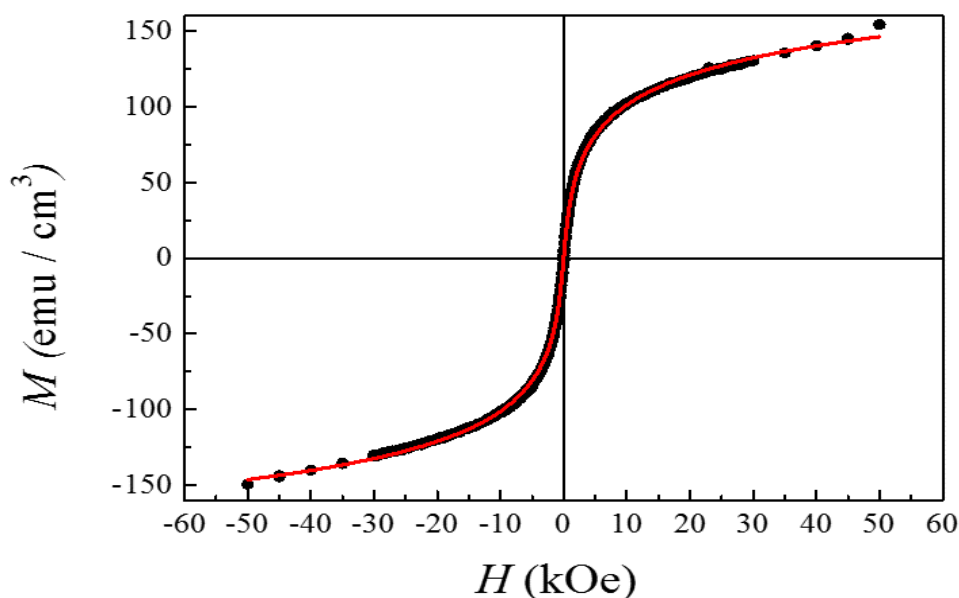


Рисунок 1.1 — Зависимость намагниченности ансамбля суперпарамагнитных частиц из аморфного магнитномягкого сплава $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ от внешнего магнитного поля (символы), описываемая законом Ланжевена (Ур. 1.5) (сплошная линия).

магнитномягких сплавов. Если же частицы, входящие в ансамбль, обладают анизотропией, то их магнитные свойства будут в значительной мере отличаться от свойств ансамбля ланжевеновских частиц. Ансамбли анизотропных наночастиц описываются в модели Стонера-Вольфарта [5].

В отличие от магнитных свойств ансамбля ланжевеновских частиц, где определяющим внутренним параметром системы является магнитный момент отдельной наночастицы (а так же, в случае немонодисперсных ансамблей – дисперсия по объёму, и соответственно, результирующему магнитному моменту), а внешним параметром – температура и приложенное поле, магнитные свойства ансамблей частиц в модели Стонера-Вольфарта зависят от многих дополнительных факторов. Наиболее важными среди них являются анизотропия наночастиц (за счёт формы и кристаллического поля) и их взаимное расположение в ансамбле, определяющее величину и тип магнитного взаимодействия (обменное, диполь-дипольное). Среди внешних факторов, влияющих на магнитное поведение ансамбля, наравне с температурой можно перечислить начальное состояние ансамбля (которое может быть неравновесным) и время наблюдения за ансамблем.

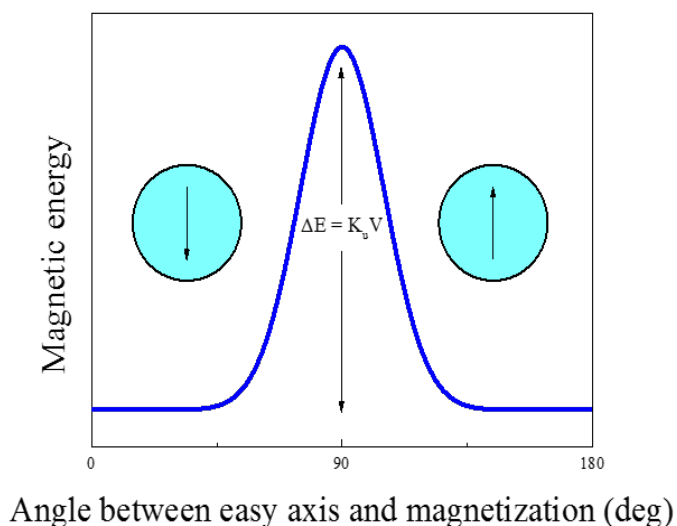


Рисунок 1.2 — Изображение двойной потенциальной ямы, определяющей зависимость энергии от ориентации магнитного момента в пространстве.

В заданном интервале значений внешних магнитных полей наличие у каждой наночастицы одноосной анизотропии приводит к возникновению потенциального барьера, разделяющего два энергетических минимума в фазовом пространстве ориентаций магнитного момента (Рис. 1.2). Время жизни магнитного состояния частицы в каждом из минимумов будет определяться высотой барьера и эффективной температурой системы. Установление равновесия в таком ансамбле будет происходить путём термоактивационных переориентаций магнитного момента через барьер с характерным для данной температуры временем релаксации.

Так как процесс установления термодинамического равновесия происходит за конечный промежуток времени, то, в зависимости от характерного для каждого эксперимента времени наблюдения за системой, или времени измерения, и температуры, магнитное состояние ансамбля можно условно разделить на два типа: заблокированное и разблокированное. Блокированное состояние будет соответствовать всему участку температур, ниже некоторой характерной температуры, при котором в каждой экспериментальной точке система не успевает приблизиться к своему равновесному состоянию за установленное время измерения. Как результат такого состояния в магнитных свойствах системы будут проявляться эффекты блокировки, связанные с метастабильностью системы, которые

в случае магнитоэлектрических измерений с протяжкой магнитного поля будут соответствовать возникновению коэрцитивности и остаточной намагниченности на кривых перемагничивания. Разблокированное состояние будет соответствовать всему участку температур, выше той же характерной температуры блокировки. В этом температурном диапазоне система характеризуется малым по сравнению со временем измерения временем релаксации и в каждой экспериментальной точке система успевает приближаться к своему, соответствующему этой точке равновесному состоянию. Так как любая система стремится минимизировать размагничивающее поле, для суперпарамагнитного ансамбля в разблокированном состоянии величина макроскопического магнитного момента будет близкой к нулю. Как результат эффекты блокировки практически не будут проявляться. Значение же этой характерной температуры, разделяющей заблокированное и разблокированное состояния, называется температурой блокировки T_b . В объемном ферромагнетике аналогом температуры блокировки выступает температура Кюри, при которой тепловые флуктуации могут преодолеть очень высокий (по сравнению с суперпарамагнетизмом) энергетический барьер, обусловленный обменным взаимодействием между ионами. Значение температуры блокировки будет сильно зависеть от времени измерения, характерного для каждого из типов экспериментов [6].

С точки зрения петель намагниченности, по которым часто делают вывод о магнитной структуре материала, суперпарамагнетное состояние вещества характеризуют следующие особенности: на зависимости намагниченности образца от поля $M(H)$ отсутствует гистерезис, насыщение достигается в относительно больших полях (от 1 Т), и M является универсальной функцией от H/T , то есть присутствует скейлинг. Важно отметить, что суперпарамагнетное состояние можно разрушить путем охлаждения системы. Это является следствием того, что характерное время флуктуаций магнитного момента частицы меняется с температурой экспоненциально, и намагниченность быстрее переходит в состояние метастабильного равновесия при понижении температуры. Температура, называемая температурой блокировки линейно зависит от объема частицы

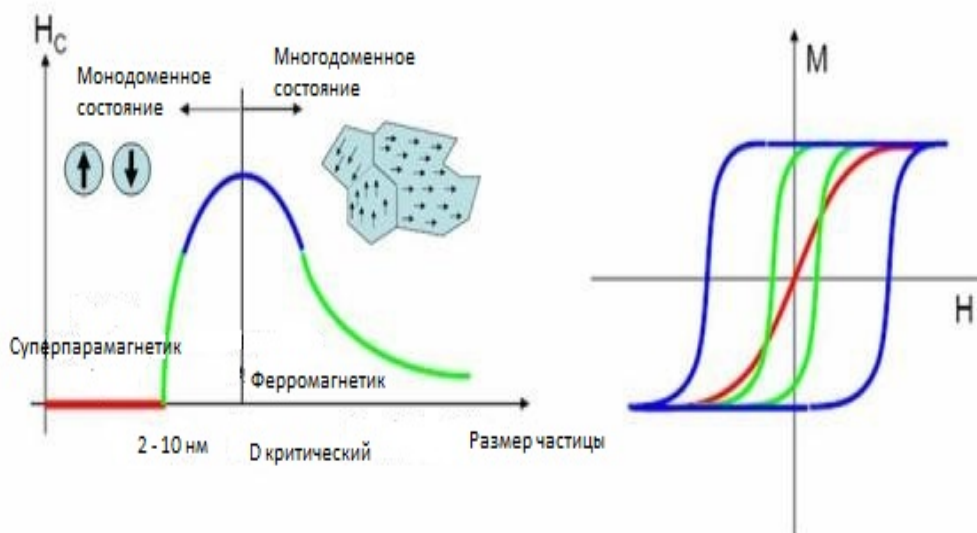


Рисунок 1.3 — Зависимость коэрцитивной силы H_c от размера наночастицы.

и величины анизотропии, которая определяется формой и материалом частицы. Внутренняя анизотропия наночастиц определяется кристаллическим полем реального материала, из которого она состоит, что включает в себя влияние дефектов и нарушения симметрии на поверхности частицы. Наличие дефектов и поверхности может привести к неоднородной намагниченности в частице и к искажению идеальной магнитной структуры: например, процесс перемагничивания может проходить не через когерентное вращение магнитных моментов ионов (такой механизм предполагает модель Стонера-Вольфарта), а с нуклеацией доменной стенки на поверхности частицы. Качественная зависимость коэрцитивной силы H_c при постоянной температуре от размера магнитных наночастиц представлена на Рис. 1.3.

Одной из причин возрастания коэрцитивной силы H_c при уменьшении размера частиц является то, что H_c связана обратной зависимостью с вероятностью переворота спинов в направлении, противоположном исходному. Соответственно, при уменьшении числа вероятных направлений переворота возрастает H_c . В неоднородных частицах такая зависимость также связана со смещением доменных стенок. При уменьшении размера частиц из-за возрастающего влияния обменного взаимодействия количество доменов уменьшается, и роль доменных стенок в процессах перемагничивания становится менее значительной. Поэтому вплоть до

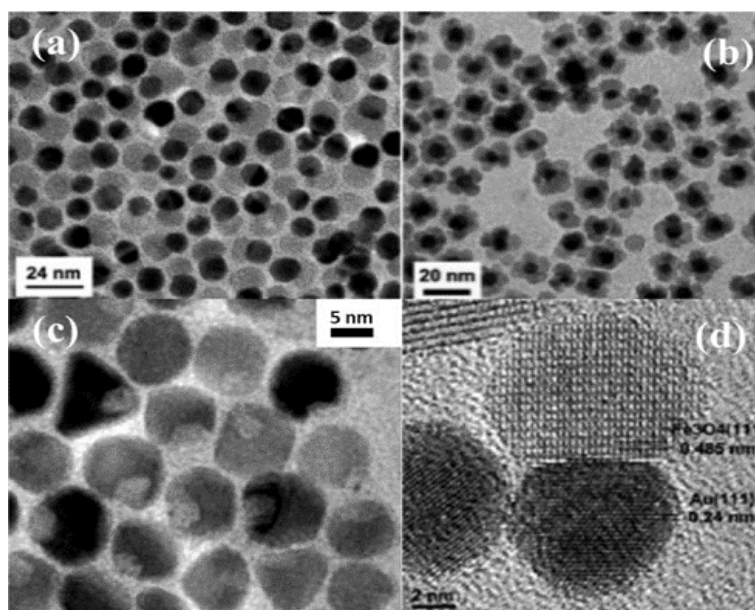


Рисунок 1.4 — ПЭМ изображения образцов (a) Au-Fe₃O₄ димеров, (b) Au-Fe₃O₄ кластеров, (c) димеров после травления, (d) эпитаксиальных димеров Au-Fe₃O₄ с высоким разрешением [7].

критического размера частиц D_{cr} коэрцитивная сила H_c растёт с уменьшением размера D . Уменьшение при $D < D_{cr}$ (Рис. 1.3) связано с тем, что возрастает роль тепловых флуктуаций [5].

Среди факторов, определяющих магнитные свойства ансамблей ферромагнитных наночастиц, одними из наиболее важных являются магнитоэлектронное диполь-дипольное и обменное взаимодействия между частицами. Учёт взаимодействия между частицами является нетривиальной физической задачей и требует детального знания их размера, формы, и упорядочения. Взаимодействие приводит к существенным изменениям термодинамических и магнитных характеристик системы, таким как температура блокировки, коэрцитивная сила, доменная структура и т.д. [8, 9]. Большое влияние на магнитные свойства ансамбля также оказывает окружение наночастиц: матрицы, в которой они находятся, подложка, интерфейсы. Так, в работе [7] был исследован бинарный ансамбль эпитаксиальных наночастиц магнетита (Fe₃O₄) и золота (Au). На Рис.1.4 представлены изображения наночастиц, полученные методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). В данном композите был обнаружен эффект обменного смещения (от англ. exchange bias) при низкой

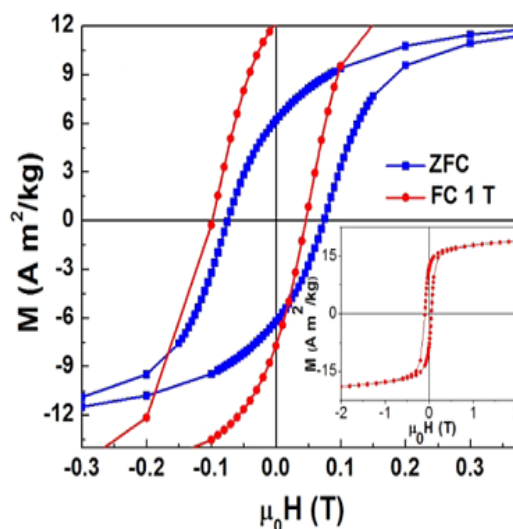


Рисунок 1.5 — Циклы Zero-field-cooling (синие квадраты) и field-cooling в поле 1 Т (красные кружки) измерений намагниченности $M(H)$ при температуре 2 К для Au-Fe₃O₄ димеров. На вставке изображена полная петля гистерезиса [7].

температуре $T = 2$ К (Рис. 1.5). Как правило, этот эффект наблюдается в слоистых структурах ферромагнетик / антиферромагнетик или системах ядро / оболочка с интерфейсом ферромагнетик / антиферромагнетик. Подобное поведение кривой намагниченности означает наличие “запертых” магнитных моментов на интерфейсе наночастица Fe₃O₄ / наночастица золота. Авторы объясняют происхождение данного эффекта механическими напряжениями, возникающими на интерфейсе.

Интересные эффекты также появляются при контакте металлических наночастиц с полупроводником. В недавних работах был обнаружен эффект Гигантского Инжекционного Магнитосопротивления (ГИМС, или GIMR от англ. Giant Injection Magnetoresistance) в гетероструктурах гранулированная плёнка / полупроводник. Чтобы подробнее обсудить этот эффект, сначала необходимо ввести понятие магнитосопротивления и рассмотреть историю предыдущих связанных с ним открытий.

Нобелевская премия по физике 2008 года была присуждена Питеру Грюнбергу (Германия) и Альберу Феру (Франция) за открытие эффекта Гигантского Магнитосопротивления (ГМС, или GMR от англ. Giant Magnetoresistance) в многослойных магнитных плёнках [10, 11]. Это явление,

при котором благодаря взаимодействию Рудермана-Киттеля-Касуя-Йосиды (РККИ-взаимодействия) ферромагнитные слои многослойной сверхрешётки ферромагнетик / немагнитный металл демонстрируют антиферромагнитное упорядочение. Таким образом, благодаря спин-зависимому рассеянию электронов [12–14] сопротивление структуры при ферромагнитной ориентации слоёв значительно меньше, чем при антиферромагнитной. Эти два состояния можно использовать как логические 0 и 1 и конструировать на этой базе логические устройства. Данный эффект оказал значительный эффект на индустрию записи информации, и до конца 1990-х годов записывающие головки жёстких дисков изготавливались из ГМС структур. Конечное устройство, работающее как элемент сопротивления, основанный на магниторезистивной гетероструктуре называется магнитным затвором (англ. magnetic junction).

Ещё в 1975 году также был предсказан эффект Гигантского Туннельного Магнитосопротивления (ТМС, или TMR от англ. Tunneling Magnetoresistance) [15], однако, по величине он не превышал нескольких процентов (для количественной оценки эффекта используется формула 1.6), то есть был настолько мал, что практическое использование его началось только после открытия гетероструктуры Fe / MgO / Fe, в которой эффект составляет несколько сотен процентов [16] при комнатной температуре в случае высококачественного барьерного слоя и 50 – 80% при наличии примесей в барьерном слое или шероховатостей на интерфейсах. После её открытия устройства для чтения информации с магнитных жёстких дисков перешли на работу с магнитными туннельными затворами (англ. magnetic tunnel junction, или просто MTJ). В настоящее время активно идёт разработка ТМС структур с органическими туннельными барьерами [17, 18], ТМС сверхрешёток [19], и других технологий, которые позволят увеличить эффект ТМС, что приведёт к увеличению чувствительности и снижению стоимости приборов, основанных на работе этого эффекта. Ниже будет рассмотрен один из примеров магниторезистивных структур нового типа – гетероструктура гранулированная плёнка / полупроводник с эффектом Гигантского Инжекционного Магнитосопротивления (ГИМС, по аналогии с ГМС, ТМС и т.д.).

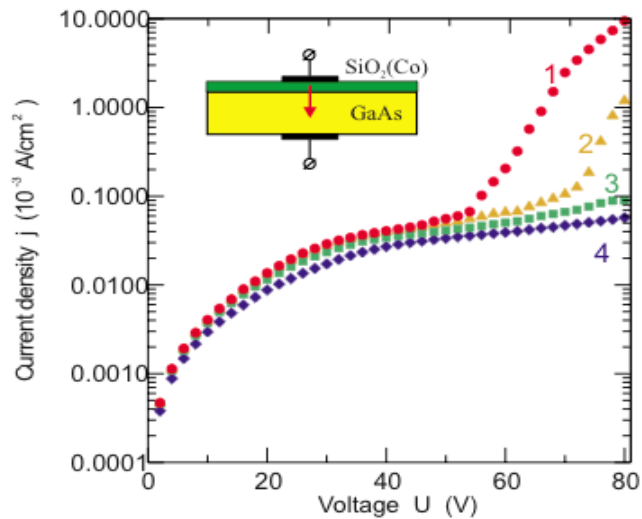


Рисунок 1.6 – ВАХ ГП $\text{SiO}_2(\text{Co } 71 \text{ ат.}\%)$ в GaAs при приложенных в плоскости плёнки полях 1) $B = 0 \text{ T}$ 2) $B = 0.5 \text{ T}$ 3) $B = 1 \text{ T}$ 4) $B = 1.5 \text{ T}$

Величина любого эффекта магнитосопротивления (гигантского, колоссального, туннельного, анизотропного, и т.д.) может быть количественно охарактеризована коэффициентом магнитосопротивления MR :

$$MR = \frac{R(H) - R(0)}{R(0)} = \frac{j(0) - j(H)}{j(0)}, \quad (1.6)$$

где $R(H)$ и $R(0)$ – сопротивление образца в магнитном поле H и без поля соответственно, $j(H)$ и $j(0)$ – плотность тока в поле и при $H = 0$. Например, коэффициент ТМС для структуры Fe / MgO / Fe при комнатной температуре составляет 200% [16], что считается высоким показателем.

В недавней работе [20] было показано, что гранулированные плёнки на основе наночастиц кобальта в диэлектрической матрице оксида кремния, напылённые на полупроводниковую подложку из арсенида галлия, демонстрируют высокие показатели магнитосопротивления при инжекции электронов из плёнки в полупроводник. Этот эффект был назван Гигантским Инжекционным Магнитосопротивлением (ГИМС). Эффект ГИМС наблюдается в гетероструктурах $\text{SiO}_2(\text{Co } x \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ с концентрацией кобальта в гранулированной плёнке от $x = 54 \text{ ат.}\%$ до $x = 75 \text{ ат.}\%$ [20]. Эффект ГИМС проявляется при приложении разности потенциалов между поверхностью плёнки и задней стороной подложки, то

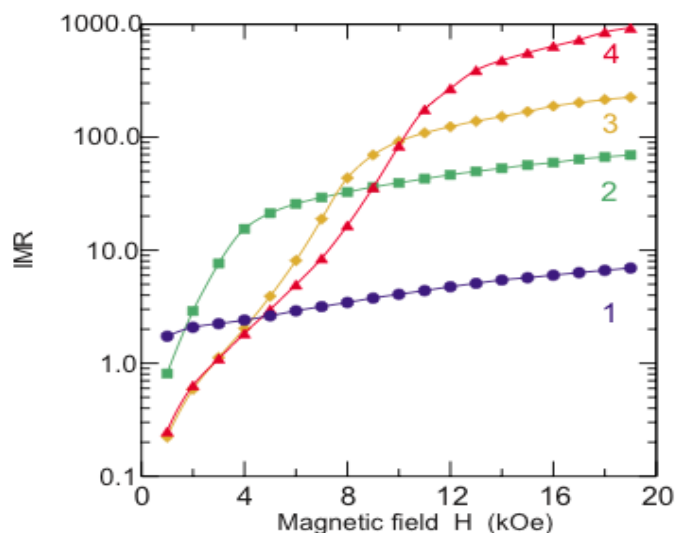


Рисунок 1.7 — Зависимость коэффициента магнитосопротивления MR ГП $\text{SiO}_2(\text{Co } 38 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ от магнитного поля B при различных напряжениях 1) $U = 60 \text{ В}$ 2) $U = 70 \text{ В}$ 3) $U = 80 \text{ В}$ 4) $U = 90 \text{ В}$

есть в поперечном к поверхности гетероструктуры направлении (Рис. 1.6). Зависимость MR от величины магнитного поля для структуры $\text{SiO}_2(\text{Co } x \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ представлена на Рис.1.7 [21].

Коэффициент MR достигает $10^5\%$ при комнатной температуре $T = 300 \text{ К}$ и приложенном в плоскости плёнки магнитном поле $B = 1.9 \text{ Т}$ при напряжении $U = 90 \text{ В}$. Важно подчеркнуть, что максимум эффекта достигается в диапазоне, близком к комнатной температуре (Рис. 1.8), что удобно для возможных приложений.

При инжекции электронов из ГП в подложку из арсенида галлия коэффициент MR на порядок больше чем при обратном процессе – при инжекции электронов из подложки в плёнку, как показано на Рис. 1.6 для образца $\text{SiO}_2(\text{Co } x \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ при $B = 2 \text{ Т}$ и $T = 300 \text{ К}$. При повышении магнитного поля, приложенного в плоскости плёнки, от $B = 0$ до $B = 1.5 \text{ Т}$ вольт-амперная характеристика (ВАХ) инжекции электронов из гранулированной плёнки в полупроводник приближается к омической (Рис. 1.6) [21].

В нулевом магнитном поле при некотором пороговом значении напряжения происходит лавинообразный процесс инжекции электронов из гранулированной плёнки в полупроводник, что приводит к резкому

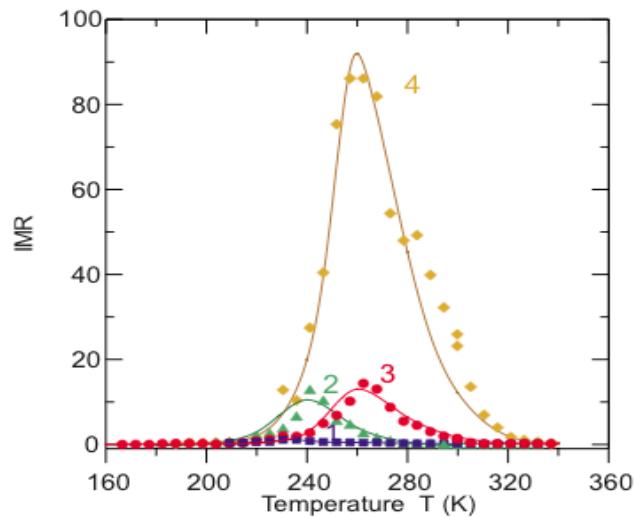


Рисунок 1.8 — Зависимость коэффициента MR ГП $\text{SiO}_2(\text{Co } 71 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ от температуры при различных напряжениях 1) $U = 40 \text{ В}$ 2) $U = 50 \text{ В}$ 3) $U = 60 \text{ В}$ 4) $U = 70 \text{ В}$

возрастанию силы тока. При включении магнитного поля в плоскости плёнки этот процесс подавляется, как показано на Рис. 1.6 для $B = 0, 0.5, 1, 1.5 \text{ Т}$. В том случае, когда магнитное поле приложено в направлении, перпендикулярном поверхности плёнки (то есть вдоль оси сложного намагничивания), или электроны инжектируются из полупроводника в гранулированную плёнку (при отрицательном напряжении), никаких значительных изменений, связанных с эффектом ГИМС не наблюдается [21].

Согласно разработанной в работе [21] теории, высокие значения эффекта связаны с формированием обогащённого электронами слоя в полупроводнике вблизи интерфейса, по аналогии тому, как подобный процесс происходит на интерфейсе металл / полупроводник с образованием барьера Шоттки. Однако, из-за магнитной поляризации электронов в плёнке, косвенное взаимодействие РККИ-типа с электронами и дырками приповерхностного слоя полупроводника индуцирует также и их поляризацию. Приложение внешнего магнитного поля приводит к увеличению высоты энергетического барьера и уменьшению его прозрачности для инжекции электронов из плёнки в подложку. Потенциальный барьер прозрачен для электронов с одинаковой поляризацией с электронами обогащённого слоя и практически непреодолим для антипараллельно поляризованных электронов. Следовательно, меняя

величину и направление внешнего магнитного поля, и меняя тем самым поляризацию спина электронов в гранулированной плёнке, можно управлять процессами туннелирования поляризованных электронов и, тем самым, величиной магнитосопротивления.

1.4 Многослойные наноструктуры металл-диэлектрик / полупроводник

Металл-диэлектрические (МД) наноконпозиты, как и гранулированные плёнки, представляют собой металлические наночастицы, помещённые в диэлектрическую матрицу. Отличие в том, что гранулированная плёнка – общее название для класса систем гранула - матрица, и может быть использовано, например, для систем магнитный-немагнитный металл Co-Cu [22]. Наноконпозиты металл-диэлектрик представляют собой наноразмерные металлические частицы, случайным образом распределённые в объёме диэлектрической матрицы. Обладая туннельной электронной проводимостью при комнатной температуре, ярко выраженными размерными эффектами и магнитными свойствами, изменяющимися в зависимости от концентрации металлической фазы от суперпарамагнитного до магнитоупорядоченного состояния, эти объекты оказываются чрезвычайно интересными объектами как для фундаментальных физических исследований, так и для возможных приложений. Наличие магнитных наночастиц в МД наноконпозитах обуславливает наличие в этих системах замечательных физических свойств, таких как гигантское магнитосопротивление и аномальный эффект Холла [23–27] при комнатной температуре, высокие значения эффекта Керра в инфракрасном диапазоне [28], высокие значения коэффициента поглощения СВЧ-излучения [29, 30] и целый ряд других необычных свойств.

Физические свойства многослойных систем, содержащих контактирующие магнитные и полупроводниковые, в которых толщина слоёв составляет порядка нескольких нанометров, во многом определяются структурой и интерфейсными особенностями между различными фазами. Основными трудностями при создании подобных систем и интерпретации их физических

свойств являются их критичность к качеству поверхности подложки и интерфейсов, а также процессы диффузии на границе раздела разнородных фаз приводящие к образованию соединений металл-полупроводник. Одним из путей решения этих трудностей является использование в качестве магнитного слоя МД, состав которого находится до порога перколяции, когда наноразмерные гранулы, хаотически распределенные в изолирующей матрице, не имеют непосредственного контакта друг с другом. Подобная структура позволяет, с одной стороны свести к минимуму влияние контактов гранул соседних слоев на макроскопические свойства системы, а с другой стороны наличие барьерного диэлектрического слоя уменьшает вероятность образования соединений на интерфейсе композит-полупроводник [31]. Отдельной задачей является также изучение влияния интерфейсов МД / ПП на магнитные свойства МД. В недавних работах [32–34] 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 детального знания устройства системы МД / ПП: морфологии слоёв, структурной организации, образования химических соединений на интерфейсах.

Получение химически невзаимодействующих МД / полупроводниковых наноструктур является неординарной задачей. В работах методом рентгеновской спектроскопии на краю поглощения (XANES) [35, 36] было показано, что в многослойных наноструктурах $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}/\text{a-Si})_{40}$, $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}/\text{SiO}_2)_{32}$ и нанокompозитах $(\text{CoFeZr})_x(\text{SiO}_2)_{(1-x)}$ в результате межатомного взаимодействия в системе образуются сложные "наноферриты" $\text{FeO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{ZrO}_2(\text{CoO})$, в которых наряду с двух- и трехзарядными ионами железа Fe^{2+} и Fe^{3+} в обменном взаимодействии в пределах металлического слоя участвуют ионы Zr^{4+} и частично Co^{2+} . Спектральные характеристики нанокompозитов, полученные методом XANES из работы [35] представлены на Рис. 1.9. Также обнаружены силициды железа и кобальта. Это говорит о химическом перемешивании материалов металлических наночастиц и диэлектрической матрицы, что может приводить к изменению магнитных

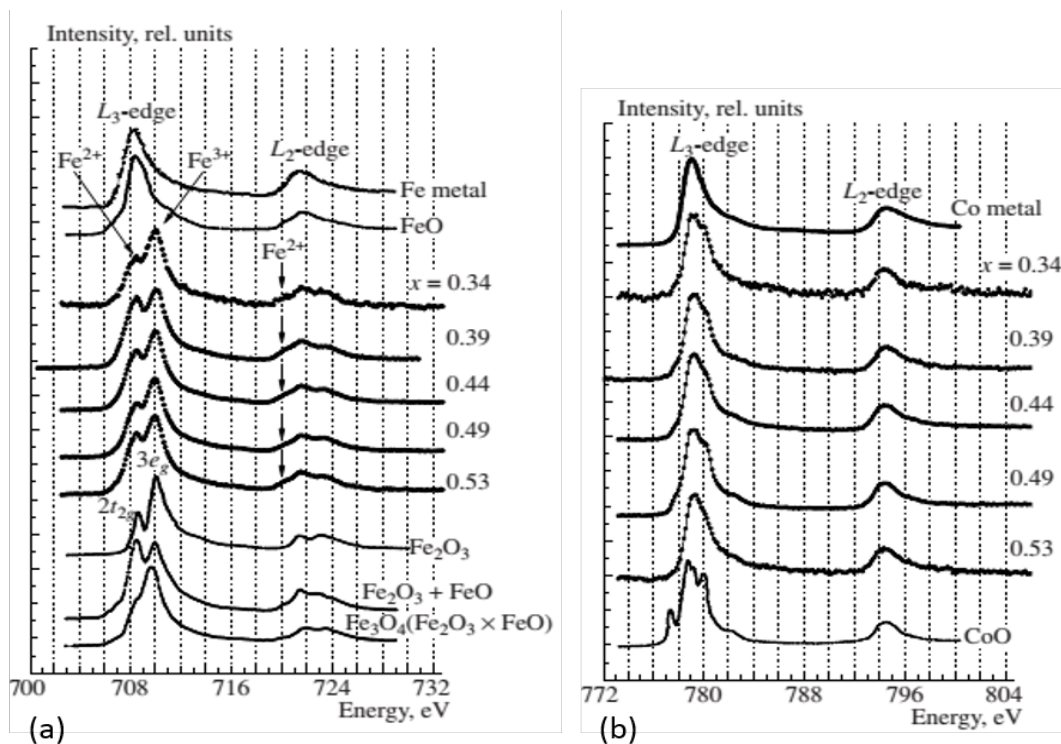


Рисунок 1.9 – (а) XANES спектры на краю поглощения железа Fe $L_{2,3}$ композита $(\text{CoFeZr})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и эталонные спектры Fe, FeO, Fe_2O_3 , и Fe_3O_4 из статьи [38]; (б) XANES спектры на краю поглощения кобальта Co $L_{2,3}$ композита и эталонные спектры XANES Co и CoO из статьи [38]. Спектры композита получены в работе [35].

свойств системы. Формирование полупроводящей оболочки из оксидов железа и кобальта вокруг наночастиц магнитного сплава $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})$ также было показано в работе [37] методом Мёссбауровской спектроскопии и измерениями импеданса многослойной структуры.

Влияние химического перемешивания магнитного материала МД слоёв и полупроводника было показано в работе [39]. Методом рефлектометрии поляризованных нейтронов было показано, что в зависимости от концентрации ферромагнитного материала в многослойных наноструктурах $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(1-x)}/\text{a-Si}$ поведение системы плавно меняется от суперпарамагнитного ($x = 34\%$) к ферромагнитному ($x = 60\%$) (Рис. 1.10). При этом, однако, на интерфейсах МД / ПП образуются магнитно-мёртвые слои толщиной около 4.5 нм при толщине всего МД слоя 12.5 нм (Рис. 1.11). Таким образом, объём магнитно активной части МД слоя значительно

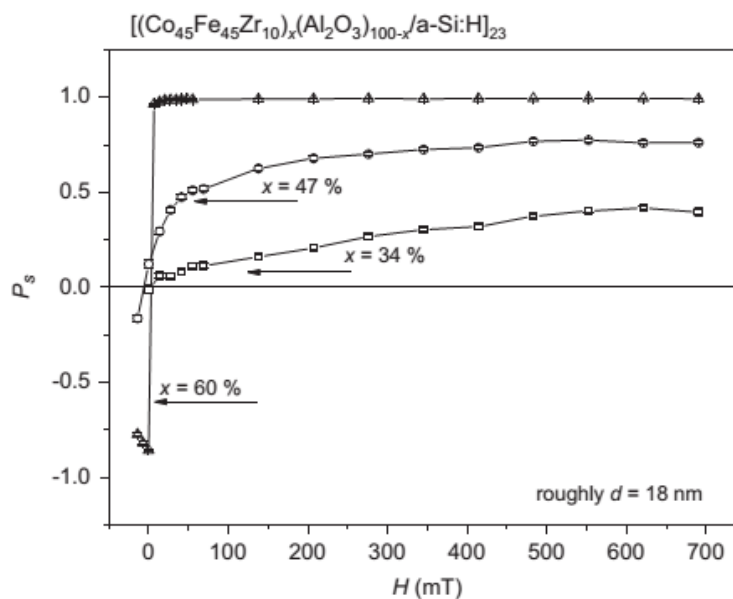


Рисунок 1.10 — Зависимость интегральной спиновой асимметрии отражения поляризованных нейтронов от образца $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(1-x)} / \text{a-Si}]_{23}$ от величины магнитного поля [39].

меньше объёма интерфейсных магнитно мёртвых слоёв, что недопустимо при попытке использования данных структур для задач, требующих чётких межслойных границ. Совокупность данных рефлектометрии поляризованных нейтронов с данными полученными методами EXAFS и Мёссбауровской спектроскопии позволяют сделать однозначный вывод о том, что химическая структура, магнитные и электрические свойств многослойных структур на основе гранулированных нанокмозитов $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(1-x)}$ и $(\text{CoFeZr})_x(\text{SiO}_2)_{(1-x)}$ с полупроводниковыми прослойками на основе аморфного кремния не являются стабильными и заранее предсказуемыми из-за образования химических соединений оксидов и силицидов переходных металлов.

Основным требованием к материалу для приложений в области высокочастотных (10 кГц – 100 МГц) применений (например, трансформаторов высокочастотных токов и напряжений) является высокая магнитная проницаемость в комбинации с малой магнитной анизотропией. Эти факторы обеспечивают эффективную передачу энергии посредством переменного высокочастотного магнитного поля [40]. Как уже отмечалось, наногранулированные композиты отвечают этим свойствам.

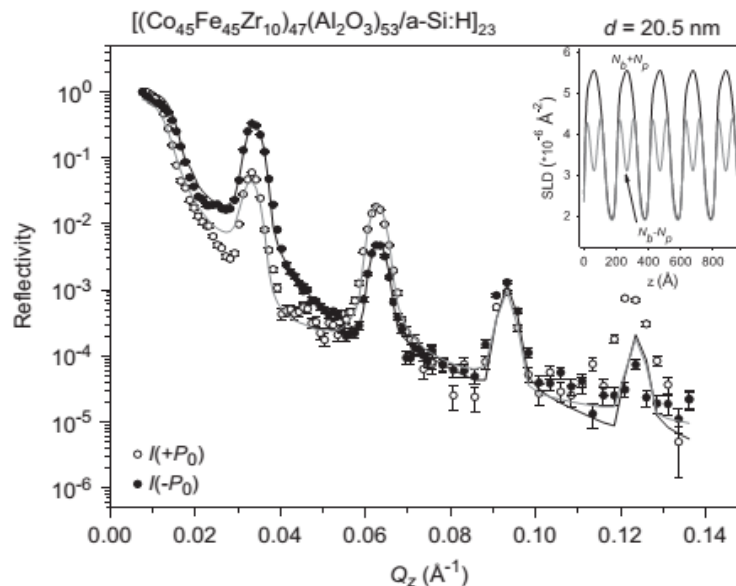


Рисунок 1.11 — Кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов от образца $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{47}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{53}/\text{a-Si:H}]_{23}$. На вставке изображён соответствующий профиль плотности длины рассеяния нейтронов [39].

Для их улучшения предпринимаются попытки создание более сложных многослойных материалов на основе чередующихся слоёв нанокompозита и полупроводника. Проблемы, возникающие при создании подобных структур, были показаны в предыдущем абзаце. Далее же рассмотрим свойства этих материалов применительно непосредственно к поставленной задаче.

В работе [41] были изучены свойства различных многослойных наноструктур на основе гранулированного нанокompозита металл-диэлектрик $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}$ с различными материалами (Si, SiO_2 , SiC, C, Bi_2Te_3 , Cu, CuO и др.) в качестве прослоек толщиной от 1.5 нм до 8.5 нм. В результате были получены многослойные пленки девяти различных композиций. Высокочастотные магнитные свойства (действительная μ' и мнимая μ'' части комплексной магнитной проницаемости) измерялись резонансным методом на частоте 50 МГц. Кроме того, для изучения электрических свойств систем были проведены измерения сопротивления. Было показано, что для большинства многослойных гетероструктур при увеличении толщины прослойки до 1 нм электрическое сопротивление меняется незначительно. В интервале толщин прослойки h от 1 до 1.6 нм наблюдается резкий спад, и электрическое сопротивление уменьшается на три

порядка величины. Дальнейшее увеличение толщины прослойки практически не изменяет величину электрического сопротивления гетерогенной системы. Подобные закономерности наблюдались и для многослойной структуры $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si}]_{30}$ [33]. Было показано, что высокочастотные свойства таких структур имеют невысокие значения μ' и μ'' , что можно наблюдать на Рис. 1.12 для зависимости магнитной проницаемости от толщины прослойки до толщин меньше 1.2 нм. При дальнейшем увеличении толщины слоя возникает значительное увеличение действительной и мнимой частей комплексной магнитной проницаемости, что можно объяснить возникновением магнитного упорядочения векторов намагниченности ферромагнитных гранул. На начальной стадии этого процесса ансамбль ферромагнитных частиц за счет слабого магнитного взаимодействия между ними имеет достаточно высокую дисперсию локальных полей анизотропии, так как каждая отдельная гранула обладает своим направлением магнитной анизотропии. Такая магнитная структура будет обладать высокими значениями магнитных потерь в магнитных полях ВЧ-диапазона. При дальнейшем увеличении толщины полупроводниковой прослойки магнитное взаимодействие между гранулами увеличивается, дисперсия локальных полей анизотропии уменьшается и, как следствие, величина μ'' становится незначительной в случае, если частота естественного ферромагнитного резонанса для пленки с данной магнитной структурой находится при значительно больших частотах, чем частота измерения. В структурах с полупроводниковой прослойкой наблюдается явная корреляция магнитных и электрических свойств многослойных гетерогенных структур. Данные позволяют судить о значительном влиянии количества носителей заряда на механизм появления магнитного упорядочения. Существует некое критическое значение удельного электрического сопротивления пленок, ниже которого в них наблюдается магнитное упорядочение. Эта зависимость становится еще более наглядной при рассмотрении многослойной пленки, где в качестве немагнитной прослойки использовалась медь. Это справедливо для всех видов исследуемых пленок и не зависит от состава прослоек. Даже если и образуются какие-либо соединения на границе раздела композит–полупроводник, их вклад в процесс магнитного

упорядочения незначителен. Главным в нем остается влияние определяющих проводимость носителей заряда в прослойке. Полученные результаты можно связать с возникновением косвенного обменного взаимодействия между изолированными ферромагнитными гранулами сплава через электроны проводимости [41].

Таким образом, на основании данных литературы, можно заключить, что косвенное взаимодействие магнитных наночастиц играет значительную роль в слоях гранулированных плёнок на полупроводниковых подложках и в многослойных структурах МД нанокompозит / полупроводник. Изучение структуры и магнитных свойств таких систем представляет большой интерес в связи с возможностью управления электрическими и магнитными свойствами подобных гетероструктур посредством влияния на физические свойства полупроводника. В отличие от сложных нанокompозитных материалов, физика и технология полупроводников на данный момент является наиболее изученным разделом в физике конденсированного состояния.

1.5 Получение гранулированных наноструктур

В Институте физики твердого тела и полупроводников Национальной академии наук Беларуси для получения пленок используется метод ионно-лучевого напыления гранулированных плёнок МД. В качестве источника ионов используется широкоапертурный источник ионов с холодным полым катодом на основе двухкаскадного самостоятельного разряда низкого давления. На основе источника ионов создана экспериментальная универсальная ионно-лучевая установка, схема которой показана на Рис. 1.13. Установка содержит два широкоапертурных источника ионов (1 и 4) низкоэнергетический источник ионов холловского типа и позволяет получать металлические и оксидные пленки методом ионного распыления мишени 3, при необходимости с ионным ассистированием процесса осаждения, а также распылять различные материалы [42, 43].

Для получения гладких подложек с характерной шероховатостью меньше 1 нм был разработан метод ионно-лучевой полировки. Особенности предложенного метода заключаются в преимущественном осаждении во

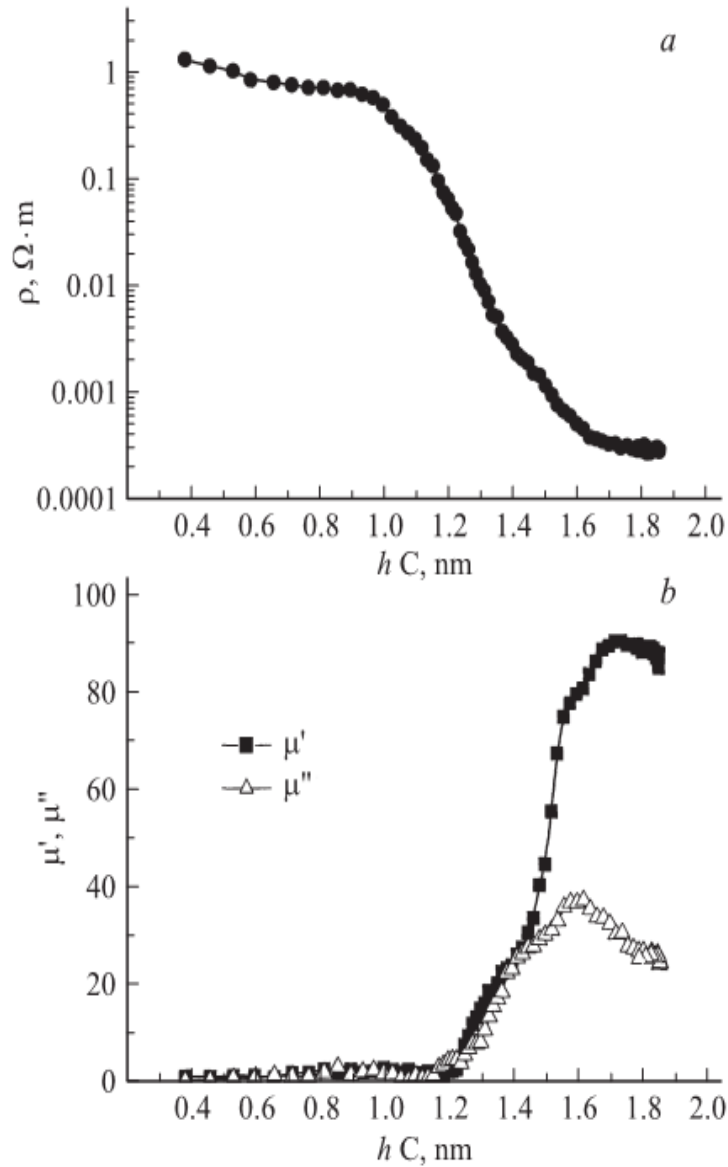


Рисунок 1.12 — Зависимость удельного электрического сопротивления ρ (a) и действительной μ' и мнимой μ'' частей комплексной магнитной проницаемости (на частоте 50 МГц) (b) от толщины прослойки C на $[(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{34}(SiO_2)_{66} / C]$ [41].

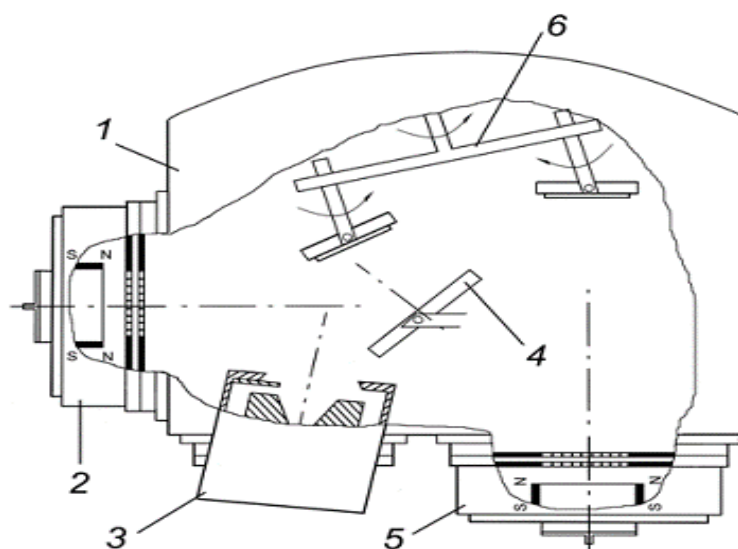


Рисунок 1.13 — Универсальная ионно-лучевая установка: 1 – вакуумная камера, 2 – источник ионов, 3 – источник ионов с открытым торцом, 4 – мишень, 5 – источник ионов, 6 – держатель подложек [42].

впадины исходного рельефа поверхности слоя наноразмерной толщины посредством распыления ионами кислорода мишени из одинакового с образцом материала и ионного ассистирования процесса осаждения, толщина осаждаемого слоя примерно в два раза меньше, чем средняя высота выступов на поверхности; в распылении полученной поверхностной структуры на глубину примерно равную двум толщинам осажденного слоя при помощи нормально падающего низкоэнергетического пучка ионов кислорода; в повторении циклов "осаждение–распыление" с постепенным уменьшением толщины осаждаемого слоя до приобретения поверхностью конечного состояния [43].

1.6 Получение многослойных наноструктур металл-диэлектрик / полупроводник

Многослойные наноструктуры металл-диэлектрик / полупроводник получают в Воронежском Государственном Техническом Университете (ВГТУ). Получение образцов осуществлялось ионно-лучевым методом на

оригинальной напылительной установке, спроектированной в ВГТУ на основе вакуумного напылительного поста УВН-2М. Технические возможности изготовленной установки позволяют получать уникальные многослойные структуры с различным сочетанием материалов слоёв и их толщин. Для напыления многослойных структур композит–полупроводник использовались составная мишень металл-диэлектрик и мишень из полупроводника. В процессе напыления между одной из мишеней и подложкой устанавливался V-образный экран, который позволял регулировать в широком диапазоне толщину слоя в зависимости от взаимного расположения мишень - подложка. Данный приём позволяет в одном технологическом цикле получения формировать слой полупроводника или композита непрерывно меняющейся толщины. Серия из пяти подложек закреплялась на подложкодержателе параллельно плоскости мишени вдоль ее длинной стороны. Непосредственно перед напылением многослойной структуры проводилась ионная очистка поверхностей подложек для улучшения адгезионных свойств напыляемой структуры и подложки. Затем, исходя из выбранных параметров процесса (напряжения на источниках ионно-лучевого распыления, тока плазмы, давления аргона на каждом источнике, общего давления в камере, скорости вращения подложек и др.), проводилось распыление двух мишеней одновременно. При прохождении подложкодержателя через позицию распыления каждой мишени формировался один слой структуры, то есть за один оборот формировался слой нанокompозита металл–диэлектрик и прослойка полупроводника [44].

Глава 2

Методы исследования слоистых наноструктур

2.1 Поверхностное рассеяние рентгеновских лучей в скользящей геометрии

2.1.1 Синхротронное излучение

За открытие рентгеновских лучей (англ. X-rays) в 1901 году Вильгельму Конраду Рентгену была присуждена Нобелевская премия по физике. В. К. Рентген наблюдал характерную флюоресценцию, возникающую при работе электронно-лучевой трубки. Современные лабораторные источники рентгеновского излучения работают на том же принципе – бомбардирование, как правило, медной или молибденовой мишени электронами и с последующей эмиссией лучей характерной длины волны.

Синхротронным излучением (СИ) называется излучение, испускаемое релятивистской заряженной частицей, испытывающей радиальное ускорение ($\mathbf{a} \perp \mathbf{v}$) [45]. Для создания источников СИ на установках используют поворотные магниты (англ. bending magnets) и, так называемые, андуляторы (англ. undulators) и/или вигглеры (англ. wigglers) – устройства пространственной модуляции магнитного поля. Накопление потока большой интенсивности такого излучения может искусственно

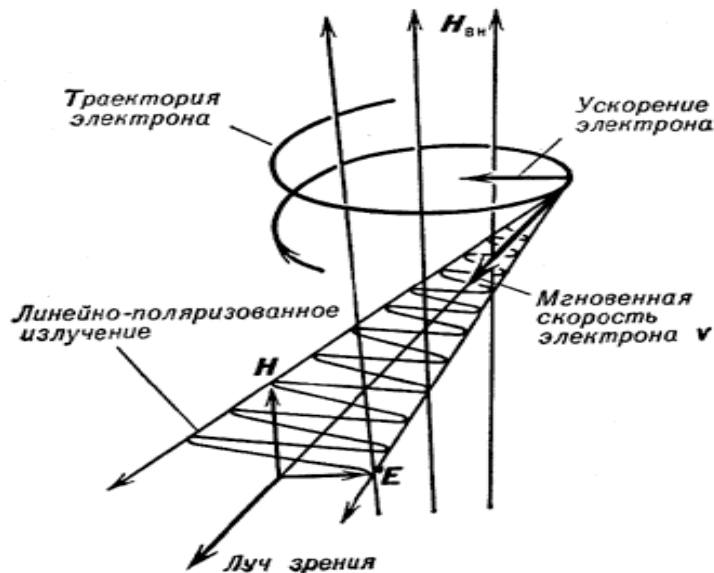


Рисунок 2.1 — Излучение релятивистского электрона во внешнем магнитном поле. В плоскости, в которой расположены векторы скорости электрона v и напряженности электрического поля E , излучение линейно поляризовано.

производиться в синхротронных накопительных кольцах с движущимися внутри на околосветовых скоростях электронами в магнитном поле.

Излучение заряженных релятивистских частиц обладает рядом существенных отличий от излучения медленнодвижущихся частиц. Из-за эффекта Доплера частота света, излучаемого быстродвижущейся частицей в направлении своего движения, сильно повышается, интенсивность излучения на высоких гармониках возрастает. При околосветовых скоростях движения электронов, можно пренебречь эффектами квантовой электродинамики из-за огромной разницы энергий электронов и синхротронного излучения и рассматривать задачу в классическом приближении. У релятивистских частиц с энергией $E \gg mc^2$ излучение в области высоких гармоник обладает практически непрерывным спектром и сосредоточено в направлении мгновенной скорости в узком конусе с углом раствора $\psi \sim mc^2/E$.

Релятивистский электрон, движущийся в магнитном поле с перпендикулярной направлению его скорости компонентой H , описывает либо окружность (если у него нет компоненты скорости вдоль поля), либо спираль. Частота его вращения $\nu_H = \frac{eH}{4\pi mc} \cdot \frac{mc^2}{E} = \frac{eH}{2\pi E}$.

Узкий конус, в пределах которого заключено излучение электрона, поворачивается вместе с поворотом вектора мгновенной скорости электрона (Рис. 2.1). Это означает, что наблюдатель, находящийся в плоскости орбиты электрона, видит вспышки синхротронного излучения в те моменты времени, когда скорость электрона направлена на него. Вспышки следуют через промежутки времени $\tau = 2\pi E/ecH$, длительность каждой вспышки $\delta\tau \approx (2mc/eH) \cdot (mc^2/E)^2$. При такой схеме можно получать СИ с характерным энергетическим спектром и поляризацией [46, 47].

Можно выделить следующие особенности СИ:

1. Широкий спектр излучения от микроволн до рентгеновских лучей с характерными энергиями от сотен эВ до сотен кэВ.
2. Очень высокая интенсивность излучения.
3. Пространственная когерентность пучков (за счёт возможности фокусировки пучка при сохранении высокой интенсивности).
4. Возможность использования как линейной, так и циркулярной поляризации.
5. Возможность использования в импульсном режиме с пикосекундным разрешением для исследования динамических процессов.

Для исследования в физике твёрдого тела наиболее важным свойством является спектр излучения, содержащий длины волн, позволяющие изучать объекты с характерными размерами от долей единицы ангстрема до десятков нанометров. Крайне важным представляется возможность экспериментов с высоким разрешением по времени (до масштабов пико- и фемтосекунд), что позволяет проводить исследования динамических процессов. Для исследования магнитной структуры вещества используют рентгеновский циркулярный либо линейных дихроизм и рассеяние СИ на краю поглощения.

2.1.2 Малоугловое рассеяние рентгеновских лучей

Для исследования объектов с характерным размером от 1 нм до 1000 нм можно выделить метод Малоуглового рентгеновского рассеяния (МУРР или

SAXS, от англ. Small-Angle X-ray Scattering), который относится к техникам упругого рассеяния (без передачи энергии от излучения к образцу). Согласно уравнению Вульфа-Брэгга

$$d = \frac{n\lambda}{2\sin\theta} \quad (2.1)$$

, где d – характерное расстояние между периодически расположенными объектами, λ – длина волны излучения, θ – угол рассеяния, n – целое число, для исследования объектов с характерным размером элементарной ячейки 1 – 1000 нм, рассеяние должно наблюдаться в области малых углов (как правило, 0.1 - 10°) при длине волны излучения 1 – 20 Å.

В диапазоне малых углов рассеяния содержится информация о форме и размере макромолекул, характерные расстояния в упорядоченных и частично упорядоченных материалах, размеры пор и т.д. Для исследования систем с характерными расстояниями от 100 нм используют высокоразрешающее Ультрамалоугловое рассеяние (УМУРР или USAXS), которое требует дополнительной коллимации рентгеновских пучков для компенсации их расходимости.

2.1.3 Малоугловое рассеяние рентгеновских лучей в скользящей геометрии

Интенсивность синхротронного излучения в рентгеновском диапазоне на много порядков выше, чем в лабораторных источниках. В связи с развитием как самих источников, так и сопутствующих компонентов рентгеновской оптики и детекторов, в последнее время пользователям стали доступны новые методики эксперимента по изучению строения и динамики вещества. Для исследования тонких плёнок, поверхностей, интерфейсов, ансамблей наночастиц, границ раздела жидких и твёрдых тел, недавно был разработан метод малоуглового рассеяния рентгеновских лучей в скользящей геометрии (GISAXS, от англ. Grazing-Incidence Small-Angle Scattering) [48]. Данная методика основана на усилении сигнала малоуглового рассеяния от приповерхностных слоёв образца в геометрии отражения по сравнению с традиционным малоугловым рассеянием в геометрии прохождения.

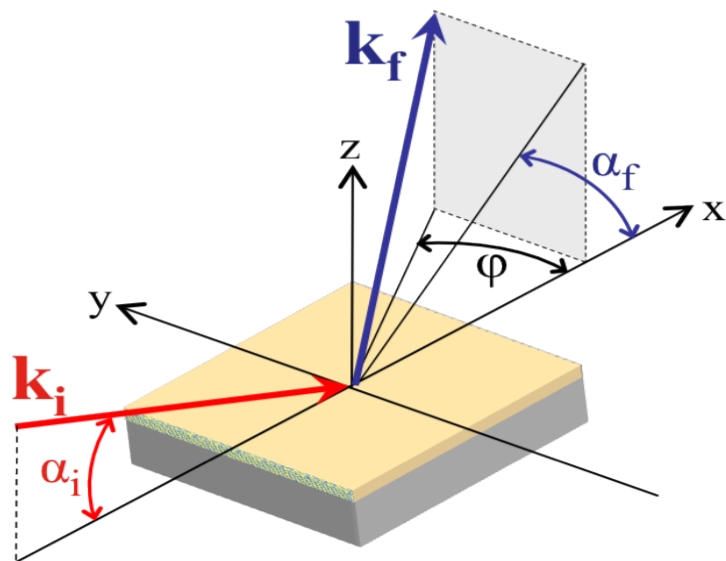


Рисунок 2.2 – Геометрия эксперимента GISAXS

Геометрия типичного GISAXS эксперимента с вертикальной плоскостью падения (плоскость образца параллельна поверхности Земли, данная геометрия характерна для установок, специализирующихся на жидких интерфейсах) представлена на Рис. 2.2. Монохроматический пучок рентгеновских лучей с длиной волны λ и волновым вектором k_i падает на поверхность под малым (“скользящим”) углом α_i . Декартова ось z перпендикулярна плоскости поверхности исследуемого образца, ось x параллельна направлению распространения падающего пучка, ось y перпендикулярна пучку и параллельна поверхности образца. Рентгеновские лучи рассеиваются вдоль вектора k_f в направлениях $(2\theta_f, \alpha_f)$ любой флуктуацией электронной плотности на исследуемой поверхности или границе раздела сред. Компоненты результирующего вектора рассеяния q имеют вид:

$$q_x = \frac{2\pi}{\lambda} (\cos(\alpha_f) \cos(2\theta_f) - \cos(\alpha_i)) \quad (2.2)$$

$$q_y = \frac{2\pi}{\lambda} \cos(\alpha_f) \sin(2\theta_f) \quad (2.3)$$

$$q_z = \frac{2\pi}{\lambda} (\sin(\alpha_f) + \sin(\alpha_i)) \quad (2.4)$$

Картина распределения интенсивности рассеянного излучения фиксируется двумерным позиционно-чувствительным детектором (ПЧД). Для исследования систем с характерными латеральными размерами рассеивателей от нескольких до нескольких сотен нанометров размер области интереса на детекторе составляет, как правило, единицы градусов и зависит от расстояния между образцом и ПЧД. Расстояние между образцом и детектором, как правило, составляет от 1 до 4 м для GISAXS экспериментов, в зависимости от размера детектора и характерного размера исследуемых неоднородностей. В качестве детекторов используются газоразрядные камеры или CCD-матрицы. Во избежание засветки детектора, как правило, прямой пучок и пучок зеркального отражения закрываются специальной заслонкой – бимстопом (англ. beamstop) [49].

В стандартных GISAXS экспериментах используются длины волн, характерные для “жесткой” области рентгена с энергией $E = 5 - 30$ кэВ, и рассеяние считается упругим, то есть без передачи энергии от фотонов к образцу, но с передачей импульса. Интенсивность рассеяния излучения в зависимости от переданного импульса $I(q)$ для латеральных флуктуаций электронной плотности (неоднородностей образца) на поверхности может быть представлена в виде произведения:

$$I(\mathbf{q}) = \langle |F|^2 \rangle S(q_{||}), \quad (2.5)$$

где F – форм-фактор рассеяния и $S(q)$ – полная интерференционная функция. Интерференционная функция описывает пространственное упорядочение объектов и их корреляции в продольных направлениях, то есть она является Фурье-образом автокорреляционной функции расположения неоднородностей в реальном пространстве. В стандартном Борновском приближении, форм-фактор F это Фурье-образ функции формы объекта, который определяется следующим образом:

$$F(\mathbf{q}) = \int_V \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}) d^3r \quad (2.6)$$

Борновское приближение работает при описании взаимодействия плоских дебройлевских волн с отдельными точечными потенциалами в бесконечной

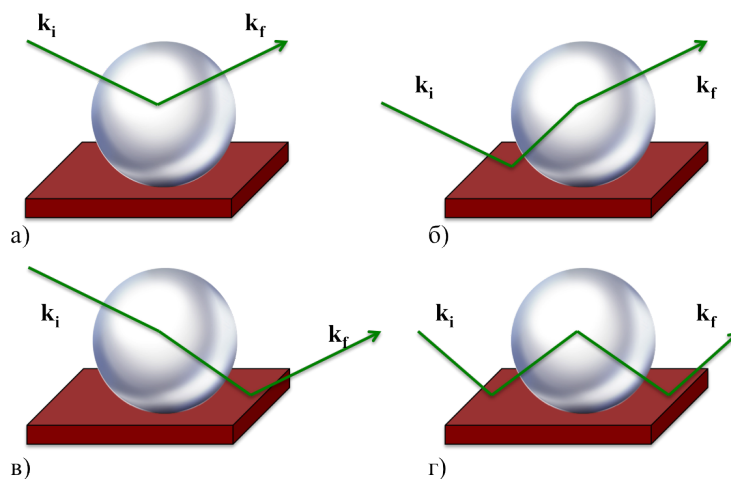


Рисунок 2.3 — Различные варианты сценария процесса рассеяния СИ: а) $q_z = k_{fz} - k_{iz}$ б) $q_z = k_{iz} + k_{fz}$ в) $q_z = -k_{iz} - k_{fz}$ г) $q_z = k_{iz} - k_{fz}$

среде. Для учёта эффектов отражения и преломления лучей на поверхности, и их интерференции, необходимо считать форм-фактор F в Борновском приближении преломлённых волн (англ. Distorted Wave Born Approximation, DWBA), где он будет иметь более сложное выражение. На Рис. 2.3 показана физическая картина, соответствующая учёту всех процессов преломления, которые рассчитываются в DWBA.

Четыре вклада, приведённые на Рис. 2.3, представляют собой четыре разных процесса рассеяния, включающих либо не включающих отражение прямого или прошедшего пучка, попадающего на детектор. Эти пучки интерферируют когерентным образом, что приводит к увеличению эффективного форм-фактора (FDBWA), в который входит классический форм-фактор с соответствующими значениями волнового вектора рассеяния. Каждый член входит с соответствующим Френелевскому отражению коэффициентом R , убывающему со степенной зависимостью как q^{-4} . Уменьшение интенсивности отражения за счёт шероховатостей можно рассчитывать классическим образом при помощи стандартных отклонений. Сечение рассеяния пропорционально квадрату модуля Фурье-образа функции распределения электронной плотности. Для малых углов эффекты, связанные с поляризацией СИ могут не учитываться. Сочетание рассчитанного с помощью DWBA форм-фактора и полной интерференционной функции

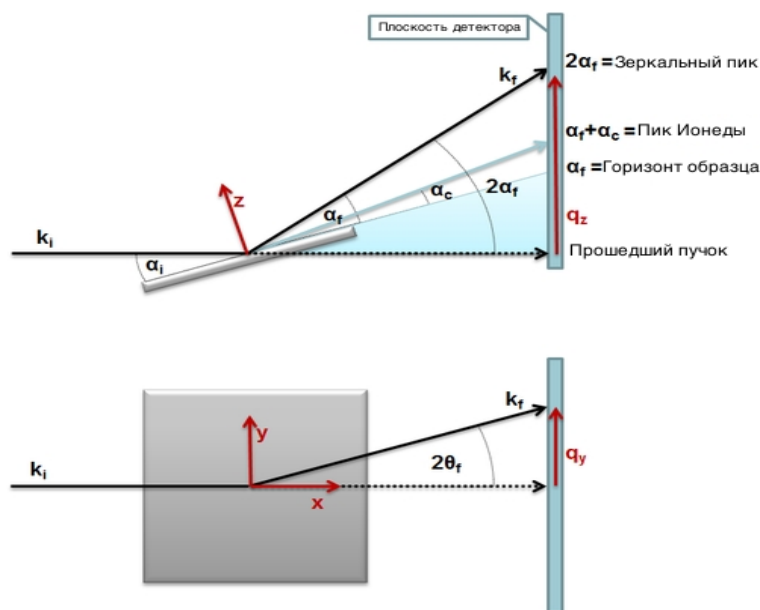


Рисунок 2.4 – Схема рассеяния при GISAXS эксперименте.

приводит к следующему выражению для полного некогерентного сечения рассеяния:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \langle |F_{DBWA}|^2 \rangle S(q_{||}). \quad (2.7)$$

На Рис. 2.4 показана схема рассеяния при GISAXS эксперименте. Такая схема верна только для малых углов α_f и малых значений q_z , так как нормаль к поверхности z и плоскость детектора не в точности параллельны друг другу. Ниже границы образца существует теневая область, в которой нельзя наблюдать рассеяние вследствие эффектов поглощения. В так называемых пиках Ионеды (Yoneda peaks) интенсивность рассеяния достигает своего максимума, а их положение по q_z определяется критическим углом отражения для данного материала α_c [50, 51].

2.1.4 Примеры использования малоуглового рассеяния в скользящей геометрии

В последнее время метод GISAXS рассеяния используется для решения множества задач из области физики конденсированного состояния, материаловедения, химии, биологии. Так как экспериментальная

геометрия не требует специальной подготовки, он может быть осуществлён на большинстве современных дифракционных и малоугловых станциях синхротронных источников, оборудованных двумерными детекторами. Однако, бывают исключения. Например, линия поверхностной дифракции BM32 ESRF (Гренобль, Франция) оборудована эпитаксиальной установкой с ультравысоким вакуумом для наблюдения процесса формирования тонких плёнок в реальном времени. На данной установке в работе [52] был изучен процесс роста нанокластеров платины на поверхности полочки оксида магния MgO в вакууме и в атмосфере CO (Рис. 2.5). В ходе исследования механизма роста было показано, что в атмосфере CO, в отличие от вакуумного роста, существует минимальный критический размер кластера платины, который составляет около 2 нм. Даже после роста слоя платины в условиях вакуума, помещение образца в атмосферу CO ведёт к химически индуцированной агломерации островков Pt докритического размера в кластеры.

Однако, гораздо чаще в литературе, посвящённой физике твёрдых тел, можно встретить примеры ex-situ исследований методом GISAXS. В работе [53] были исследованы гранулированные плёнки $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{Fe})$ и гранулированные многослойные структуры $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$, изготовленные методом магнетронного напыления. В случае образцов $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{Fe})$ на карте рассеяния выделяется эллиптическое гало, в реальном пространстве соответствующее распределению кластеров железа, имеющих небольшую анизотропия формы перпендикулярно плоскости плёнки (Рис. 2.6). Анализ карт рассеяния показал, что данные кластеры вытянуты по направлению роста плёнки и их размеры составляют $D_{\perp} = 3.3 \pm 0.2$ нм перпендикулярно и $D_{\parallel} = 2.5 \pm 0.2$ нм в плоскости плёнки. Проведённый далее анализ GISAXS рассеяния от многослойного образца $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$ соответствует более упорядоченной структуре. Набор Брэгговских пиков говорит о периодической структуре в направлении перпендикулярном плоскости плёнки. С другой стороны, два пика диффузного рассеяния свидетельствуют об образовании кластеров Co в плоскости плёнки. Положения этих характерных пиков позволило определить ГЦК упорядочение кластеров кобальта в многослойной структуре. Таким образом, была показана разница в механизмах самоорганизации атомов железа и кобальта в матрице диоксида алюминия.

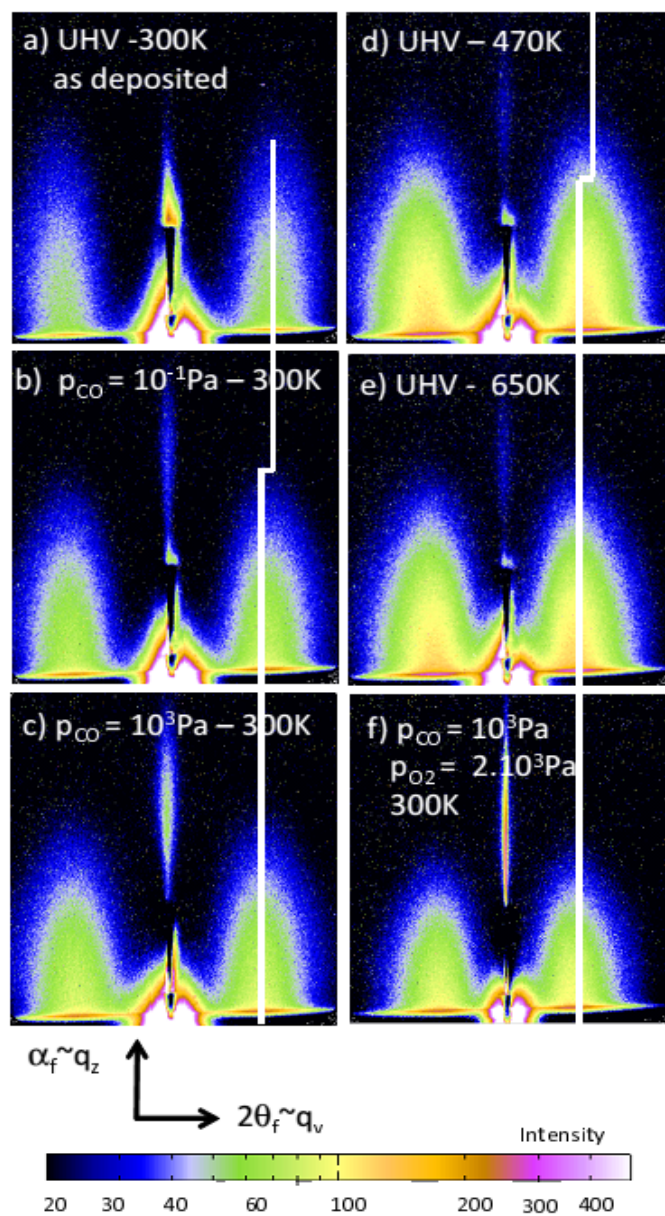


Рисунок 2.5 — Экспериментальные карты рассеяния GISAXS полученные в процессе роста нанокластеров Pt наложке MgO [52].

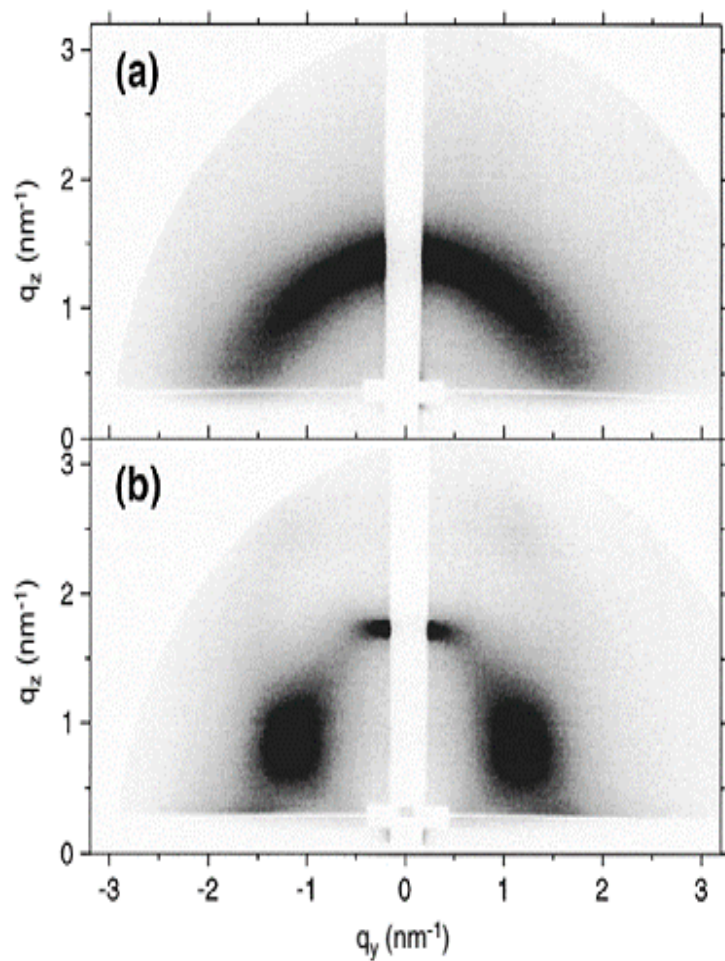


Рисунок 2.6 — Карты GISAXS от образцов (а) гранулированной плёнки Fe 35% Al₂O₃ и (b) гранулированной многослойной структуры [Co(0.7 нм)/Al₂O₃ (3 нм)]₃₀ из статьи [53].

В случае плёнок большой толщины (порядка 10 нм и более), благодаря возможности контролировать глубину проникновения рентгеновского излучения изменением наклона угла падения пучка, становится возможным исследование различных слоёв образца. Так, в работе [54] были исследованы гранулированные плёнки толщиной 210 нм на кремниевой подложке: наночастицы серебра были упакованы в углеродную матрицу $\text{Ag}_{33\%}\text{-C}$. Изменение угла падения пучка позволило просканировать распределение наночастиц в объёме плёнки и на интерфейсах воздух / плёнка и плёнка / подложка. Карты рассеяния при различных углах падения излучения приведены на Рис. 2.7. При поверхностном рассеянии (угол падения равен критическому углу отражения плёнки) на карте присутствуют только два симметрично расположенных относительно прямого пучка пика, соответствующие среднему размеру кластера серебра 10 нм. Однако, при увеличении угла, и, как следствие, глубины проникновения излучения, на карте проявляется эллиптическое гало, соответствующее объёмному распределению наночастиц со средним размером 4.4 нм. На основании представленных экспериментов был сделан вывод о том, что углеродная матрица эффективно предотвращает диффузию атомов серебра и образования кластеров, в то время как на поверхности ничто не мешает росту больших кластеров.

2.2 Нейтронная рефлектометрия

2.2.1 Нейтронное излучение

Открытие электрически нейтральной элементарной частицы – нейтрона в 1932 году принадлежит Сэру Дж. Чедвику, за что он был удостоен Нобелевской премией по физике в 1935 году [55]. Нейтрон, как элементарная частица, обладает следующими свойствами: масса $m = 939,565378(21)$ МэВ; спин 1/2 (фермион); время жизни в свободном состоянии $t_l = 885,7(8)$ секунды; магнитный момент $\mu_n = -1,91304272(45)$ ядерного магнетона [56].

Следующие особенности нейтронного излучения важны для исследований в области физики конденсированного состояния вещества:

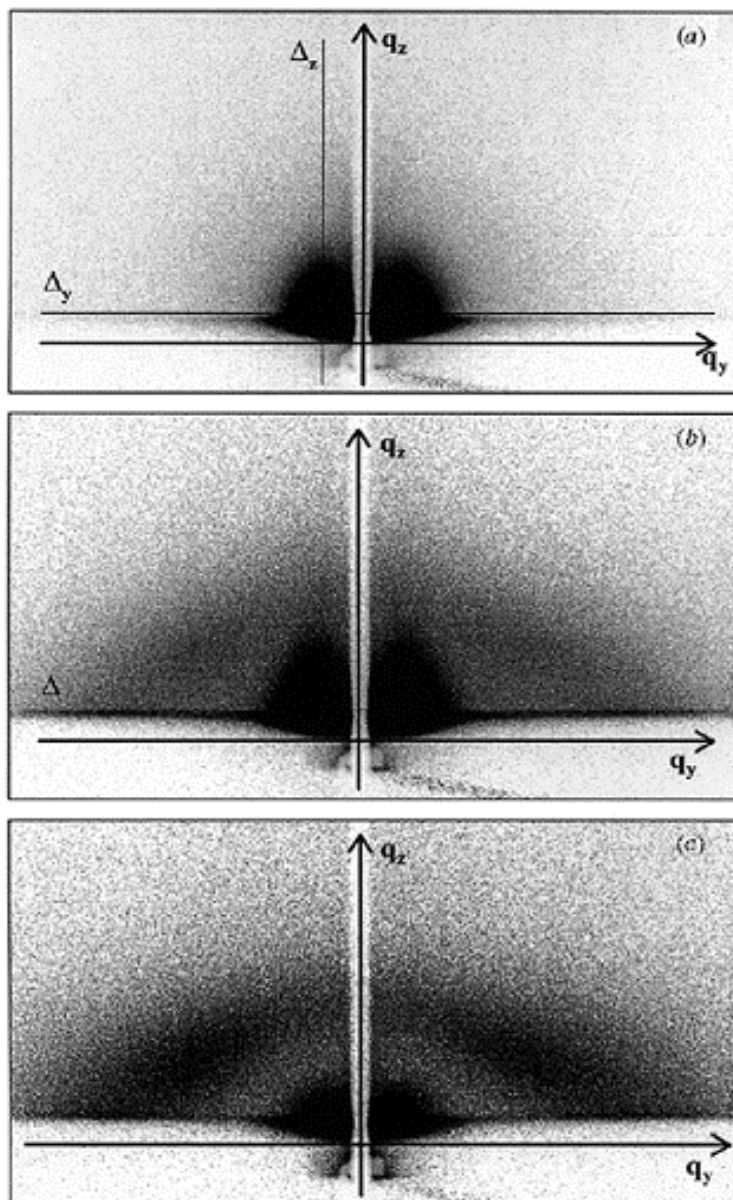


Рисунок 2.7 – Карты GISAXS рассеяния от образцов $\text{Ag}_{33\%}\text{-C}$ (210 нм) измеренные при различных углах падения (a) $\alpha_i = \alpha_c$, (b) $\alpha_i = \alpha_c + 0.05^\circ$, (c) $\alpha_i = \alpha_c + 0.1^\circ$ из статьи [54].

- Нейтроны взаимодействуют с ядрами атомов, а не с электронными оболочками, что позволяет точно определять координаты атомов, различать изотопы и исследовать лёгкие элементы.
- Нейтрон имеет собственный магнитный момент, поэтому нейтронное рассеяние — один из прямых методов исследования магнитных структур (особенно эффективны пучки поляризованных нейтронов).
- Нейтрон слабо взаимодействует с веществом, поэтому не разрушает исследуемую систему и позволяет изучать образцы большого объёма.
- Благодаря высокой проникающей способности излучения, рассеяние нейтронов предоставляет широкие возможности использования в эксперименте различного окружения образца, такое как ячейки высокого давления, конденсаторы, печи, сложные криостаты, электромагниты.

Эффективность нейтронных методов определяется в существенной степени качеством доступных источников нейтронного излучения, прежде всего плотностью потока и спектром нейтронов.

Основным типом нейтронных источников до настоящего времени остаются ядерные реакторы — источники постоянного действия, использующие для производства нейтронов цепную реакцию деления урана. Источники испарительного типа, основанные на выбивании нейтронов быстрыми протонами из тяжелой мишени (они работают в импульсном режиме), для ряда исследований имеют определенные преимущества, но из-за низкого, по сравнению с реакторами, среднего потока не могут в полной мере конкурировать с последними. Импульсные источники, однако, позволяют использовать хорошо на данный момент разработанные времяпролётные техники, позволяющие получать более высокое разрешение по длине волны нейтронов [57–60].

2.2.2 Взаимодействие нейтронного излучения с веществом

Нейтроны являются субатомными частицами, состоящими из двух кварков d и одного u , которые могут быть испущены при делении ядер в результате их

естественного распада либо под действием внешнего излучения. Нейтроны электрически нейтральны и обладают спином $s = 1/2$ и собственным магнитным моментом. Начальная энергия вылетающего из ядра нейтрона составляет более 0.10 МэВ. На исследовательских ядерных реакторах быстрые (или горячие) нейтроны замедляются в результате столкновений с ядрами атомов поглотителя. Далее, нейтроны, в зависимости от энергии, переопределяются как промежуточные (от 0.025 эВ до 0.10 МэВ) и тепловые (ниже 0.025 эВ). Медленные нейтроны рассеиваются на ядрах, в основном, упругим образом или вызывают экзотермические ядерные реакции. Реакции ${}^3\text{He}(n, p) \rightarrow {}^3\text{H}$; ${}^{10}\text{B}(n, \alpha) \rightarrow {}^7\text{Li}$ используются для регистрации нейтронов в нейтронных детекторах и счётчиках. Для получения холодных нейтронов используются замедлители, охлаждаемые до температуры жидкого азота и жидкого водорода (20 К). Ультрахолодные нейтроны выводятся из замедлителя резко изогнутыми вакуумными нейтронноводами [61]. Для исследования в области физики конденсированного состояния, как правило, используются тепловые (дифракция, спектроскопия) и холодные (малоугловое рассеяние, рефлектометрия) нейтроны.

2.2.3 Рефлектометрия поляризованных нейтронов

Рефлектометрия (от лат. reflecto – отражаю и греч. metreo – измеряю) – метод исследования границ раздела сред (интерфейсов) путём анализа зеркально отражённых от изучаемой границы пучков молекул, атомов, субатомных частиц или электромагнитного излучения. В основе нейтронной рефлектометрии лежит изучение плоских раздела сред путём анализа отражения пучка низкоэнергетических (холодных) нейтронов (10^{-1} эВ), падающих под малыми углами ($10^{-3} - 10^{-1}$ рад) к плоскости границы. При больших углах падения рефлектометрия переходит в широкоугольную дифракцию. Выделяют также зеркальную и незеркальную рефлектометрии. При регистрации интенсивности рассеянного пучка нейтронов, падающего к поверхности образца под постоянным малым углом скольжения ($10^{-3} - 10^{-2}$ рад), реализуется так называемый Grazing Incident Small Angle Neutron Scattering (англ. GISANS) метод – малоугловое рассеяние нейтронов в скользящей

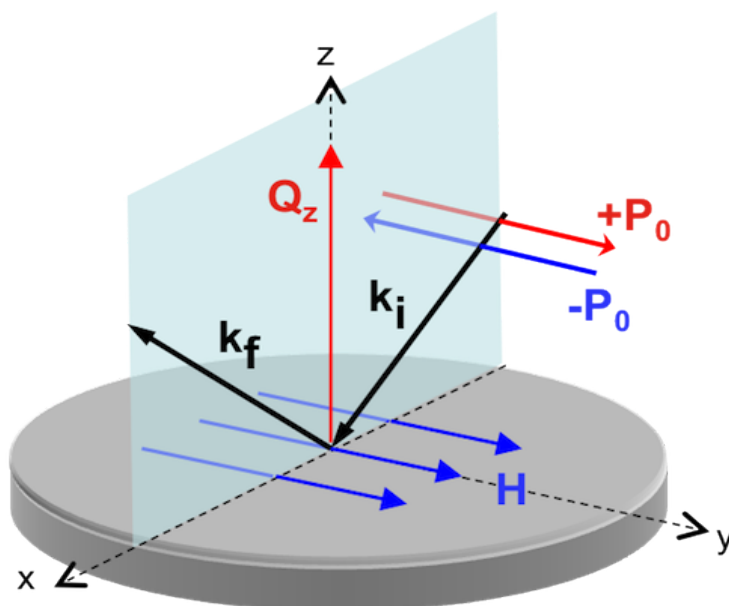


Рисунок 2.8 — Геометрия эксперимента по рефлектометрии поляризованных нейтронов.

геометрии, аналогичный синхротронному методу GISAXS. Типичная схема эксперимента по рефлектометрии поляризованных представлена на Рис. 2.8 [62].

По типу изучаемых нейтронной рефлектометрией объектов различают рефлектометрию немагнитных и магнитных сред. В первом случае разумно использовать пучки неполяризованных нейтронов из-за их большей интенсивности. При этом изучают профиль ядерного нейтронно-оптического потенциала вдоль нормали к поверхности образца на глубинах от одного до нескольких тысяч Ангстрем. Предметом изучения методом нейтронной рефлектометрии могут являться поверхности жидкостей, границы раздела различных жидкостей, поверхности твёрдых тел, тонкие плёнки, многослойные структуры, клеточные мембраны. С помощью пучков поляризованных нейтронов становится возможным также и изучение магнитного профиля образца вдоль нормали к его поверхности, то есть поведение вектора локальной намагниченности вглубь образца. В частности, исследуются особенности магнитных свойств приповерхностной (толщиной до 10000 \AA) области ферромагнетиков, интерфейсов ферромагнетик / сверхпроводник, искусственных мультиферроиков, и прочих многослойных структур [63].

Поляризованными нейтронами называется пучок нейтронов, спины которых имеют выделенную ориентацию по отношению к какому-либо преимущественному направлению в пространстве, как правило, направлению, выделенному системой внешних магнитных полей. Поскольку нейтрон обладает спином $s = 1/2$, то в магнитном поле \mathbf{B} возможны две ориентации его спина: параллельно или антипараллельно \mathbf{B} . Нейтронный пучок считается поляризован, если он содержит существенно разное количество нейтронов со спинами, ориентированными вдоль $(+P_0)$ и против $(-P_0)$ направления внешнего магнитного поля, при этом степень поляризации пучка определяется следующим образом:

$$P(k_z) = \frac{I(k_z, +P_0) - I(k_z, -P_0)}{I(k_z, +P_0) + I(k_z, -P_0)}, \quad (2.8)$$

где $I(k_z, +P_0)$, $I(k_z, -P_0)$ – интенсивности нейтронного пучка поляризованного вдоль и против вектора напряженности магнитного поля, соответственно, k_z – волновой вектор нейтрона. Для поляризации нейтронных пучков возможно использование различных типов нейтронных поляризаторов. На установках по малоугловому нейтронному рассеянию, эксплуатирующих, как правило, широкие пучки нейтронов, характерны гелиевые поляризаторы, в то время как на рефлектометрах устанавливаются системы суперзеркал. Поляризаторы также служат и анализаторами поляризации нейтронов.

В общем случае теоретическое значение коэффициента отражения $R(k_z)$ получают методами численного решения стационарного уравнения Шрёдингера с модельным потенциалом $U(z)$ в Борновском приближении. Для модели полубесконечной среды (пластинка бесконечно большой площади по сравнению с толщиной) задача имеет аналитическое решение [63]:

$$R(k_z) = R_0(k_z) \left| \int \frac{1}{U(\infty)} \frac{dU(z)}{dz} \exp(ik_z z) dz \right|^2, \quad (2.9)$$

где $R_0(k_z)$ – коэффициент отражения от потенциала с абсолютно резкой границей:

$$R_0(k_z) = \frac{|k_z - k'_z|^2}{|k_z + k'_z|^2}, \quad (2.10)$$

$$k'_z = k_z \sqrt{1 - U(\infty) * 2m / (\hbar^2 k_z^2)}, \quad (2.11)$$

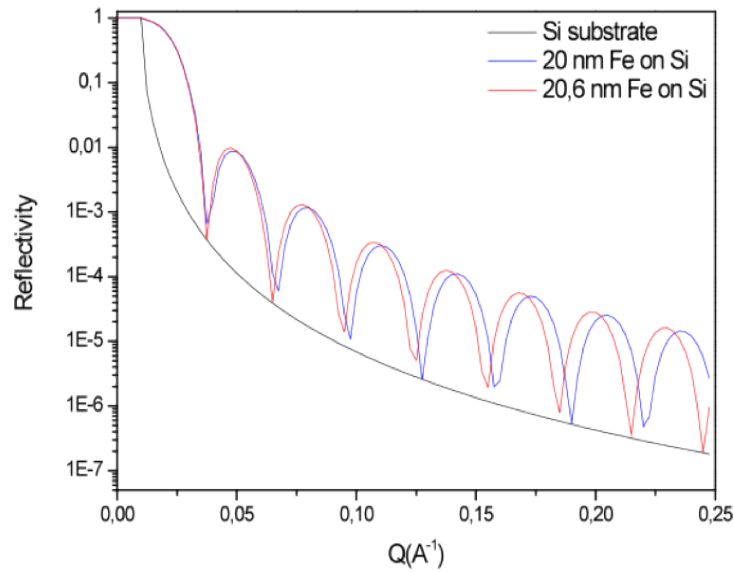


Рисунок 2.9 — Симуляция нейтронной рефлектометрии от подложки из кремния (чёрная линия), плёнки Fe толщиной 20 нм (синяя линия) и 20.6 нм (красная линия) на Si подложке.

где k'_z – компонента волнового вектора нейтрона в среде; m - масса нейтрона, $U(z)$ – потенциал взаимодействия нейтрона со слоистой структурой. Переданный при упругом (без передачи энергии) зеркальном (угол отражения равен углу падения) отражении импульс нейтрона с длиной волны λ :

$$q_z = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta). \quad (2.12)$$

При отражении нейтронов от тонких (1 – 3000 Å) плёнок, имеющих потенциал, отличный от потенциала подложки, зависимость R от q_z приобретает осциллирующий характер (Рис.2.9) вследствие интерференции волн, отражённых от поверхности и от границы с подложкой – появляются, так называемые, фринжи Киссига (англ. Kiessig fringes). По частоте осцилляций можно определить среднюю по площади засветки образца толщину d в диапазоне от нескольких ангстрем до нескольких сотен нанометров с точностью в несколько единиц ангстрем [63]. При изменении полной толщины плёнки на величину Δd , периодичность осцилляций изменяется на величину:

$$\Delta q_z = 2\pi \frac{\Delta d}{d^2} \quad (2.13)$$

Потенциал взаимодействия нейтрона со плёнкой можно разделить на ядерную и магнитную составляющие:

$$U(z) = 4\pi U_n(z) - \frac{2m}{\hbar^2} \mu_n \sigma \mathbf{B}(z), \quad (2.14)$$

где $U_n(z)$ – ядерная часть потенциала взаимодействия (плотность длины ядерного рассеяния), m – масса нейтрона, μ_n – магнитный момент нейтрона, σ – матрицы Паули, $\mathbf{B}(z)$ – плотность распределения вектора магнитной индукции в среде. Скалярное произведение матриц Паули на вектор магнитной индукции представим в сферической системе координат, с осью квантования z , связанной с внешним магнитным полем \mathbf{B} :

$$\sigma \mathbf{B}(z) = |\mathbf{B}| \begin{pmatrix} \cos(\chi) & \sin(\chi)e^{-i\phi} \\ \sin(\chi)e^{-i\phi} & -\cos(\chi) \end{pmatrix}, \quad (2.15)$$

где χ – полярный угол, ϕ – азимутальный угол.

Для отражения пучка поляризованных нейтронов характерный вид рефлектометрической кривой будет зависеть как от ядерного состава, так и от магнитных свойств исследуемого образца. Коэффициент отражения пучка нейтронов $R^{++}(q_z)$, поляризация спинов которых совпадает с направлением суммарного вектора магнитного момента образца, будет выше, чем интенсивность $R^{--}(q_z)$ в случае с антипараллельно направленными векторами поляризации и магнитного момента (первый и второй знаки '-' или '+' обозначают проекцию спина нейтрона на внешнее магнитное поле до и после рассеяния). Таким образом, восстановления профиля распределения ядерного и магнитного потенциала рассеяния (или нейтронно-оптического потенциала) из Ур. 2.14 проводится путём решения обратной задачи из анализа экспериментальных рефлектометрических кривых (Ур. 2.11). На выходе, при достаточном соответствии экспериментальных данных и расчётных моделей, полученных итерационными методами, такими как метод Паррата [64], с высокой точностью определяется ядерный профиль и распределение вектора магнитной индукции и величина намагниченности в образце. В эксперименте также могут регистрироваться коэффициенты отражения $R^{-+}(q_z)$ и $R^{+-}(q_z)$ для исследования процессов рассеяния, связанных с переворотом спина нейтрона. Такие процессы происходят при

отражении нейтронов от плёнок и поверхностей, вектор намагниченности всех или нескольких слоёв которых неколлинеарен вектору направления поляризации [65], но лежит в плоскости поверхности образца.

2.2.4 Примеры

Рефлектометрия поляризованных нейтронов – сложный метод исследования, требующий доступа к редкому экспериментальному оборудованию. Рассмотрим некоторые задачи, решённые при помощи этой техники. Метод идеально подходит для исследования слоистых систем со сложным межслойным магнитным взаимодействием. В работе [66] была исследована ГМС сверхрешётка Fe / Cr (001). На Рис. 2.10 представлены двумерные карты отражения и основанная на них модель магнитного упорядочения слоёв железа.

По одномерным срезам двумерных карт отражения поляризованных нейтронов было определено магнитное упорядочение соседних слоёв железа, косвенно взаимодействующих через слои хрома посредством РККИ-взаимодействия. Было показано, что вектора намагниченности соседних слоёв железа имеют девяностоградусное отклонение друг от друга. По ширине пиков незеркального отражения нейтронов были определены средние размеры антиферромагнитных доменов в слоях железа.

В литературе есть несколько примеров использования рефлектометрии поляризованных нейтронов для исследования ансамблей магнитных наночастиц. В работе [67] на инструменте ADAM (ILL, Гренобль, Франция) были изучены магнитные свойства и структурная организация магнитных наночастиц кобальта в оболочке олеиновой кислоты. В данном исследовании были проведены также уникальные эксперименты по малоугловому рассеянию поляризованных нейтронов в скользящей геометрии (англ. PolGISANS). Учитывая малые объёмы образца в эксперименте в скользящей геометрии, даже на высокопоточных инструментах в ILL такие эксперименты требуют нескольких дней для получения одной карты рассеяния. Данные экспериментов по рефлектометрии поляризованных нейтронов и соответствующих теоретических подгонок представлены на

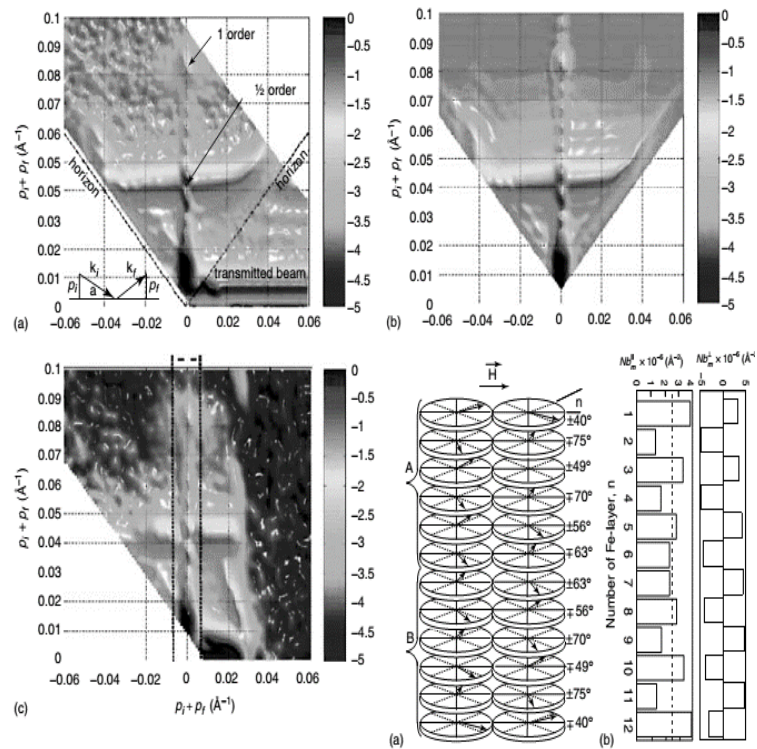


Рисунок 2.10 — (а) Экспериментальная двумерная карта рассеяния нейтронов от сверхрешётки Fe / Cr (001). (b) Теоретическая модель. (c) Карта рассеяния, аналогичная (а) измеренная с анализом поляризации отражённых нейтронов. Нижний правый рисунок: теоретическая модель, описывающая магнитное упорядочение слоёв железа в сверхрешётке.

Рис. 2.11. Эксперимент показал, что в направлении перпендикулярном плоскости образца не происходит упорядочения наночастиц кобальта в чётко определённые слои, иными словами, распределение частиц в плёнке однородно во всех направлениях. Кроме того, увеличение контраста плотности длины рассеяния при намагничивании образца (Рис. 2.11b,c) позволило измерить карту рассеяния в скользящей геометрии и определить структуру плёнки в плоскости образца на нейтронном рассеянии.

2.3 Магнитометрия

SQUID (от англ. superconducting quantum interference device) магнитометрия является одним из наиболее точных способов измерения магнитных моментов. SQUID магнитометр представляет собой сверхпроводящее кольцо с двумя Джозефсоновскими туннельными контактами. Метод основан на интерференции волновых состояний электронов в двух ветвях джозефсоновских контактов. В случае отсутствия внешнего магнитного поля обе ветви эквивалентны, и волны находятся в одинаковой фазе. Разность фаз возникает при наличии внешнего поля из-за наведённого тока в сверхпроводнике. Таким образом, становится возможным измерение отдельных квантов магнитного потока [68].

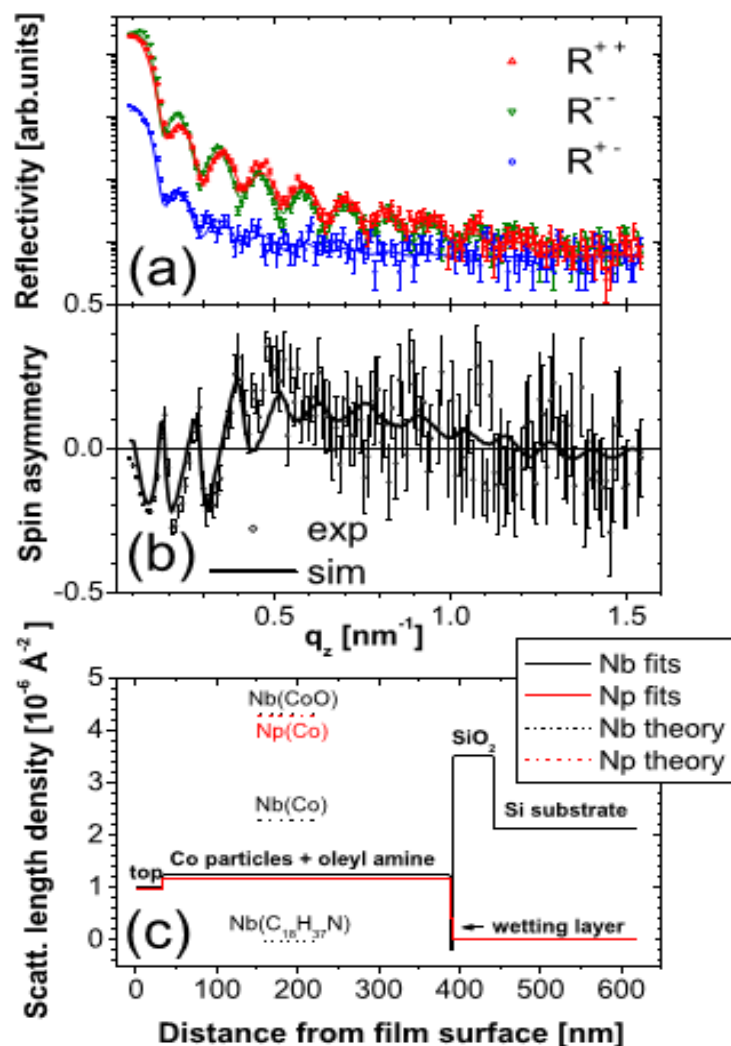


Рисунок 2.11 — (a) Данные (символы) и модели (сплошные линии) измеренные от образца при температуре 10 К в состоянии магнитного насыщения. (b) Спиновая асимметрия, иллюстрирующая чисто магнитный вклад в отражение. (c) Профиль плотности длины рассеяния, рассчитанный из подгоночных коэффициентов.

Глава 3

Исследование гранулированных магнитных плёнок $\text{SiO}_2(\text{Co})$

3.1 GISAXS

3.1.1 GISAXS на ID10 ESRF

Эксперименты по рассеянию синхротронного излучения проводились в Европейском центре синхротронных исследований ESRF (European Synchrotron Radiation Facility, Гренобль, Франция) на линии ID10 [69]. В экспериментах использовался коллимированный пучок СИ размером $0.1 \times 0.1 \text{ мм}^2$ с длиной волны $\lambda = 0.95 \text{ \AA}$. Пучок падал на поверхность образца под скольльзящим углом $\alpha_i = 0.32^\circ$. Интенсивность рассеянного излучения измерялась двумерным ПЧД MARCCD-133 с разрешением 2048 на 2048 пикселей. Центральная часть детектора была закрыта от засветки прямым и отражённым пучками вольфрамовым бимстопом.

Пучок синхротронного излучения проникает в плёнку на конечную глубину L_p , где рассеивается на неоднородностях внутренней структуры плёнки. Глубина проникновения СИ L_p зависит от величины угла падения α_i и значения коэффициента преломления вещества $n = 1 - \delta - i\beta$, вещественная часть которого δ связана с электронной плотностью ρ как $2\pi\delta = \lambda^2 r_e \rho$, где

r_e – длина томсоновского рассеяния (или классический радиус электрона). В общем случае глубина проникновения L_p выражается следующим образом в зависимости от α_i :

$$L_p(\alpha_i) = \frac{\lambda}{2\sqrt{2\pi \left(\sqrt{(\alpha_i^2 - \alpha_c^2) + 4\beta^2} - \sqrt{(\alpha_i^2 - \alpha_c^2)} \right)}}, \quad (3.1)$$

где $\alpha_c = \sqrt{2\delta}$ – угол полного внешнего отражения от поверхности образца. Как видно из данной формулы, меняя значение угла падения α_i , можно контролируемым образом менять глубину проникновения СИ, получая тем самым доступ к приповерхностным слоям образца, находящимся на различной глубине [70].

3.1.2 Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на GaAs

Для эксперимента были выбраны два образца плёнок $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \text{ ат. \%})$ толщиной 90 нм и 900 нм на подложке $n\text{-GaAs}$ толщиной 0.4 мм.

На Рис. 3.1 представлены двумерные карты интенсивности малоуглового рассеяния СИ $S(\alpha_i, \alpha_f, \varphi)$, полученные при значении угла падения $\alpha_i = 0.32^\circ$. Как видно на представленных картах, характер рассеяния на обоих образцах обладает одной общей особенностью – наличием дифракционного кольца, выделенного точечной линией. Интенсивность кольца усилена при $\alpha_f = \alpha_c = 0.22^\circ$ (пик Ионеды), в то время как нижняя часть кольца отсутствует, как это обычно бывает в скользящей геометрии из-за характерного вида функции коэффициента прохождения. В остальном же, как и в обычной трансмиссионной дифракции, наличие подобного кольца свидетельствует о том, что в образцах присутствует трёхмерная изотропная система рассеивающих центров (в данном случае – наночастиц кобальта), находящихся на расстоянии $d_1 = 2\pi/Q_1$, где Q_1 – диаметр кольца выраженный в единицах переданного момента импульса (\AA^{-1}). Отметим, что поскольку рассматриваемые концентрации кобальта находятся за пределом уровня перколяции, то обнаруженное нами межчастичное расстояние d_1 должно равняться их размеру. Поэтому сравнительно большая ширина дифракционного кольца может быть интерпретирована как следствие

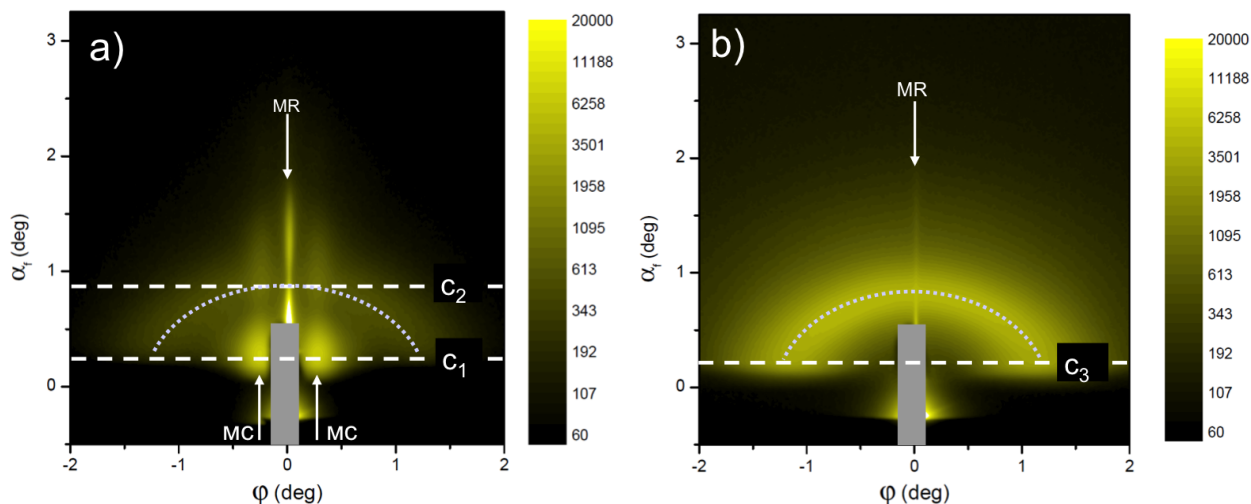


Рисунок 3.1 — Двумерные карты GISAXS при $S(\alpha_i = 0.22^\circ, \alpha_f, \varphi)$ для образцов $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ толщиной ГП (a) 90 нм и (b) 900 нм. Точечной линией выделена часть дифракционного кольца, возникающего из-за рассеяния на трехмерной структуре перколирующих частиц кобальта в основном слое ГП. Стрелками MC показано рассеяние на монослое частиц кобальта находящихся в интерфейсном слое. Стрелки MR показывают диффузное рассеяние от поверхности образцов в направлении зеркального отражения. Пунктирные линии C_1 , C_2 и C_3 соответствуют положениям срезов на распределении интенсивности, представленных на Рис. 3.2 в виде одномерных кривых. Серые прямоугольники закрывают область детектора, в реальном эксперименте защищенную поглотителем от прямого и зеркального пучков высокой интенсивности.

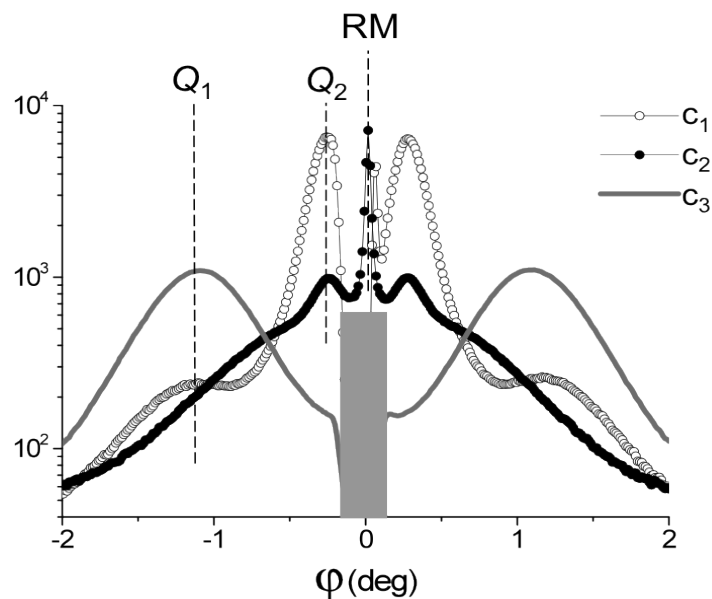


Рисунок 3.2 — Угловые зависимости интенсивности GISAXS в сечениях двумерного распределения S для образцов $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ толщиной ГП 90 нм и 900 нм.

неизбежного в этом случае разброса частиц по размеру. Другой общей особенностью распределения S для обоих образцов (впрочем, как и для любого образца в случае скользящей геометрии рассеяния) является линия диффузного рассеяния в зеркальном направлении, т.е. вдоль α_f при $\varphi = 0$. На Рис. 3.1 она показана стрелками MR (от Mirror Reflection – зеркальное отражение).

Главным отличием в распределении интенсивности рассеяния от образцов толщиной 90 нм (Рис. 3.1a) и 900 нм (Рис. 3.1b) является наличие в первом случае специфического рассеяния, характерного для монослоев нанобъектов, пространственно упорядоченных внутри слоя [49]. Данная особенность проявляется на Рис. 3.1a в виде двух цепочек пиков (обозначенных стрелками MC), повторяющихся несколько раз вдоль α_f при $\varphi = \pm 0.25^\circ$. При этом, расстояние между цепочками в направлении φ определяется видом интерференционной функции I_H , связанной с расстоянием между рассеивателями в монослое в плоскости (x, y) , а распределение пиков вдоль α_f зависит от конкретного вида форм-фактора F , зависящего от формы отдельного рассеивателя и его размера в направлении z . Поэтому, по значению α_f -координаты первого минимума в цепочках MC можно довольно точно

оценить высоту рассеивателя над уровнем подложки [71]. Согласно данным, представленным на Рис. 3.2, она составляет 5-6 нм.

Для того, чтобы более наглядно представить распределения интенсивности по углу φ , на Рис. 3.2 показаны некоторые сечения двумерных карт, сделанные при $\alpha_f = \alpha_c$ (пунктирные линии C_1 и C_3 на Рис. 3.1) и при $\alpha_f = 0.87^\circ$ (C_2), последнее из которых проходит через максимум второй осцилляции форм-фактора по α_f . Как видно, положение и ширина пиков, соответствующих дифракционному кольцу для обоих образцов, совпадает, что свидетельствует об идентичности ансамблей части в основном слое ГП h_1 с характерным размером $d_1 = 2\pi/Q_1 = 7.3$ нм. В то же время, образец толщиной 90 нм очевидно демонстрирует наличие дополнительной периодичности с существенно большим размером $d_2 = 2\pi/Q_2 = 32$ нм. Чтобы достоверно установить координаты Q_2 -пиков, было сделано два сечения – первое C_1 (показано линией с белыми символами), проходящее через абсолютные максимумы интенсивности, но частично закрытое тенью от поглотителя, и второе C_2 (линия с черными символами), проходящее через пики меньше интенсивности, но не искаженное поглотителем. Для обоих случаев положение пиков по углу φ – идентичное, что говорит о минимальности потери информации за счет применения поглотителя.

Различие вида малоуглового рассеяния для образцов с толщиной ГП 90 нм и 900 нм, очевидно, связано с соотношением этих толщин и глубины проникновения синхротронного излучения L_p . Для состава 54 % кобальта и 46 % оксида кремния параметры, входящие в выражение 3.1, имеют следующие значения: $\delta = 6.03 \cdot 10^{-6}$, $\beta = 1.9 \cdot 10^{-7}$, $\alpha_c = 0.22^\circ$, $\alpha_i = 0.32^\circ$. Соответственно, расчетное значение глубины проникновения составляет порядка 350 нм, что намного больше 90 нм и, в то же время, много меньше 900 нм. Поэтому, в случае «тонкого» образца толщиной 90 нм мы видим рассеяние не только на основной части пленки, занятой трехмерной структурой частиц с периодом d_1 , но и рассеяние на двумерной структуре интерфейсного монослоя с внутренней латеральной периодичностью d_2 . В случае же «толстого» образца толщиной 900 нм рентгеновская волна полностью рассеивается или поглощается в верхней половине пленки, характеризуемой размером d_1 , в то время как

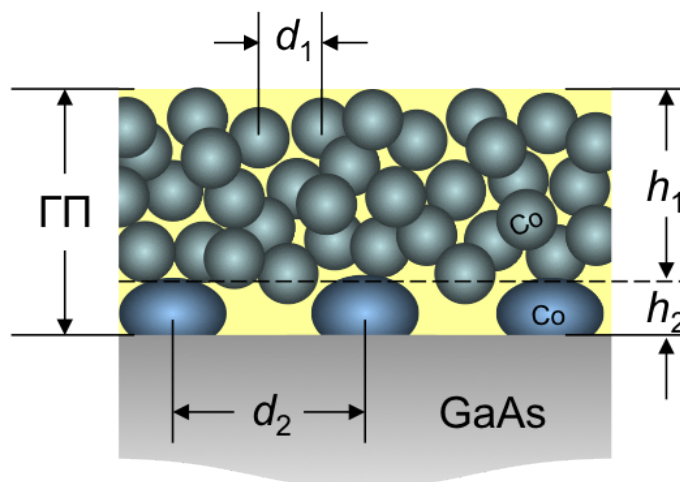


Рисунок 3.3 — Модель структуры исследованных ГП $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на подложке GaAs, полученная на основе экспериментов GISAXS.

особый слой на интерфейсе с подложкой не вносит никакого вклада в наблюдаемую картину рассеяния.

Таким образом, эксперимент по малоугловому рассеянию синхротронного излучения в скользящей геометрии позволяет предложить трёхмерную модель структуры исследованных гранулированных пленок $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на подложке GaAs, схематически показанную на Рис. 3.3. Согласно полученных в эксперименте GISAXS данным, в основном объёме пленки характерное расстояние d_1 между гранулами кобальта в любом пространственном направлении в среднем составляет 7 нм, в то же время, расстояние d_2 между гранулами в интерфейсном слое существенно больше – порядка 30 нм. При этом, толщина h_2 интерфейсного слоя равна размеру одной гранулы вдоль направления z и составляет порядка 5-7 нм независимо от толщины основной пленки [72].

3.1.3 Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на Si

Эксперимент GISAXS на образце гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co}$ 54 % ат.) / подложка Si с толщиной ГП 55 нм также проводился в Европейском центре синхротронных исследований ESRF (Гренобль, Франция) на линии ID10 с аналогичными параметрами установки и геометрией эксперимента. Двумерная картина рассеяния (Рис. 3.4а)

полностью аналогична рассмотренному ранее случаю образца ГП на подложке GaAs. На карте присутствует эллиптическое дифракционное гало, характерное для трёхмерного распределения наночастиц кобальта и два симметрично расположенных относительно зеркального отражения максимума, соответствующих монослою частиц. Гало и пики обозначены GF и ML на Рис. 3.4а, соответственно. Логично предположить, что как и в предыдущем рассмотренном случае образцов $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{GaAs}$ толщиной 90 нм, данный монослой лежит на интерфейсе гранулированная плёнка / подложка. Для определения средних межчастичных расстояний в плоскости гетероструктуры было построено одномерное сечение двумерной карты интенсивности рассеяния вдоль угла $\alpha_f = 0.20^\circ$ (Рис. 3.4b), проходящее через максимумы интенсивности рассеяния обоих типов (гало и пики). Полученные рассчитанные межчастичные расстояния составляют $d_1 = 2\pi/Q_1 = 70 \text{ \AA}$ для трёхмерной системы наночастиц и $d_2 = 2\pi/Q_2 = 306 \text{ \AA}$ для монослоя на интерфейсе ГП / Si.

3.2 SQUID

3.2.1 SQUID магнитометрия

Эксперименты по магнитометрии с помощью сверхпроводящего квантового интерферометра SQUID Quantum Design MPMS-5S проводились в Институте Физики Конденсированного Состояния Брауншвайгского Технологического Университета (TU Braunschweig, Брауншвайг, Германия).

Измерения значения намагниченности M образцов в зависимости от величины приложенного магнитного поля проводились в диапазоне полей от 0 до 5 Т. Измерения температурных зависимостей намагниченности $M(T)$ было проведено в поле $H = 10 \text{ мТ}$ (цикл FC, от англ. Field Cooling) и режиме нагрева после охлаждения в нулевом поле (цикл ZFC, от англ. Zero Field Cooling).

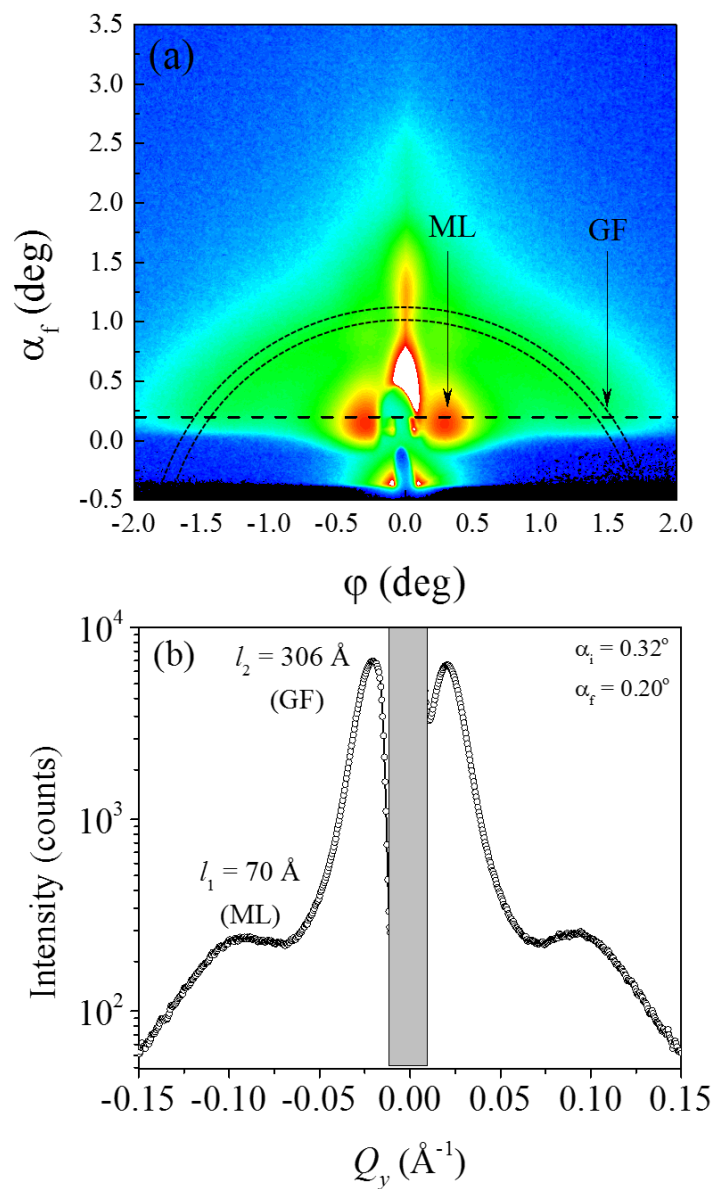


Рисунок 3.4 – (a) Двумерная карта GISAXS для образца $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \% \text{ ат.}) / \text{Si}$. Пунктирной линией обозначена линия сечения вдоль угла $\alpha_f = 0.20^\circ$. (b) Сечение интенсивности рассеяния вдоль угла $\alpha_f = 0.20^\circ$.

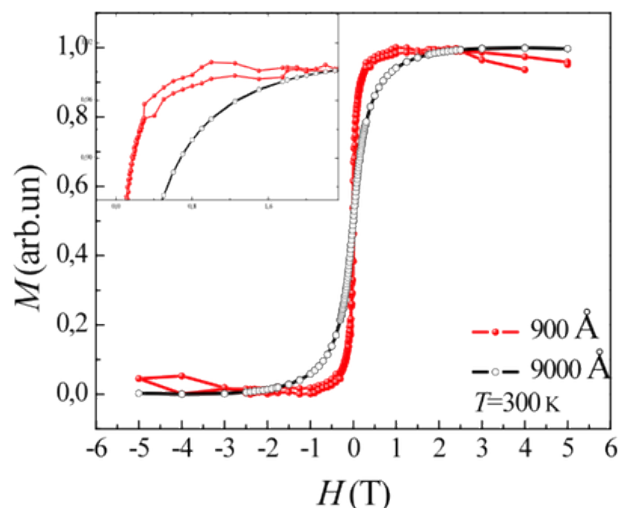


Рисунок 3.5 — Зависимость намагниченности ГП Au/SiO₂(75 ат.% Co)/GaAs с толщиной плёнки 900 Å и SiO₂(54 ат.% Co)/GaAs с толщиной плёнки 9000 Å от магнитного поля. На вставке выделены дополнительные петли вблизи намагниченности насыщения.

3.2.2 Гранулированная плёнка SiO₂(Co) на GaAs

Эксперименты по SQUID магнитометрии были проведены на образцах Au/SiO₂(75 ат.% Co)/GaAs с толщиной плёнки 900 Å и SiO₂(54 ат.% Co)/GaAs с толщиной плёнки 9000 Å, аналогичных образцам из эксперимента GISAXS.

Зависимости намагниченности образцов от приложенного вдоль поверхности плёнки магнитного поля $M(H)$ при комнатной температуре представлены на Рис. 3.5. Необходимо отметить, что из данных был вычтен линейный диамагнитный вклад от GaAs подложки и матрицы SiO₂ для адекватного определения намагниченности ГП. Нормировка петель намагниченности проводилась на намагниченность насыщения, так как точные данные об объёме образцов не были получены.

Петли намагниченности образцов демонстрируют поведение, характерное для ансамблей суперпарамагнитных частиц. Не наблюдается открытой петли гистерезиса намагниченности, что говорит об отсутствии коэрцитивной силы H_c . Тем не менее, увеличение приложенного поля H выше значения 0.8 Т приводит к появлению на кривой намагниченности M дополнительных гистерезисных петель вблизи намагниченности насыщения.

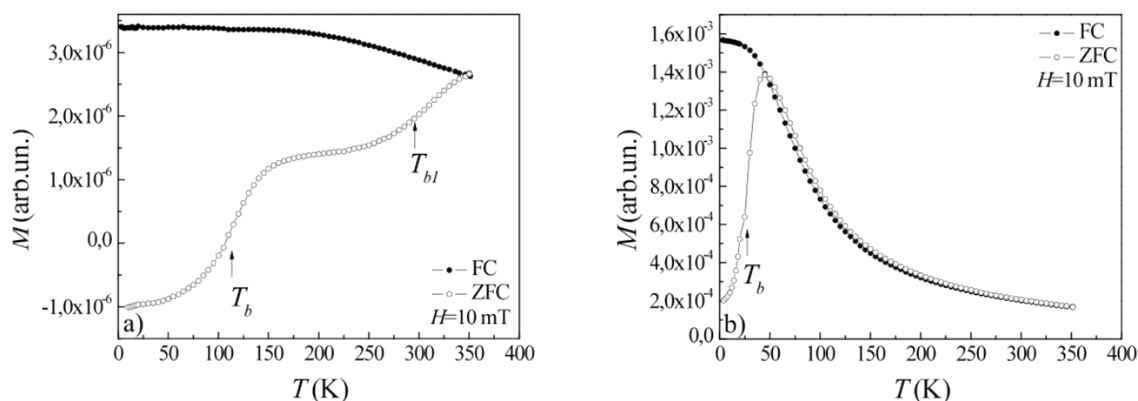


Рисунок 3.6 — FC/ZFC циклы измерения температурной зависимости намагниченности для образцов а) Au/SiO₂(75 ат.% Co)/GaAs 900 Å б) SiO₂(54 ат.% Co)/GaAs 9000 Å в магнитном поле 10 мТ.

Такие дополнительные петли не имеют общепринятого названия, в некоторых работах называются "карманами" петли намагниченности [73]. Характерная область полей, в которой наблюдаются дополнительные петли выделены на вставке к Рис. 3.5. Такое двухпетлевое поведение кривой намагниченности и наличие "карманов" наблюдается для всех исследованных образцов толщиной 90 нм и 900 нм. Однако, в случае образца толщиной 900 нм эти дополнительные петли менее выражены.

На Рис. 3.6 представлены результаты измерений температурной зависимости намагниченности образцов в режимах FC в поле насыщения и ZFC в поле 10 мТ. По поведению зависимости намагниченности $M_{ZFC}(T)$ были определены температуры блокировки системы в случае разных толщин ГП. Для точного определения температуры фазового перехода были найдены точки перегиба кривой $d^2M_{ZFC}/dT^2 = 0$, для удобства представления данных они были определены из положений максимумов первой производной кривой намагниченности (Рис. 3.7) [74]. Как и в любом фазовом переходе, внешнее поле смещает критическую температуру. Для суперпарамагнитных систем при увеличении приложенного магнитного поля температуры блокировки смещаются в область более низких температур. В таком случае, значение температуры блокировки системы в нулевом поле $T_b(0)$ можно найти при помощи экстраполяции [75]. Как хорошо видно из Рис. 3.7, на производной

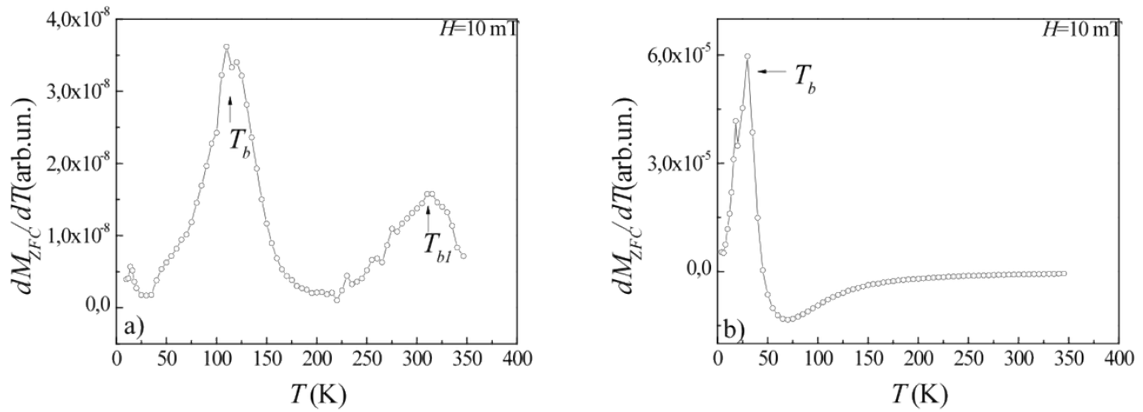


Рисунок 3.7 — Первая производная функции ZFC температурной зависимости намагниченности для образцов а) Au/SiO₂(75 ат.% Co)/GaAs 900 Å б) SiO₂(54 ат.% Co)/GaAs 9000 Å в поле 10 мТ.

кривой $M(T)$ в цикле ZFC наблюдаются два характерных максимума, что означает, что образец толщиной 900 Å обладает двумя различными температурами фазового перехода. Так как эксперимент был проведён в диапазоне температур, далёком от точки Кюри кобальта ($T_c = 1400$ К [76]), то единственной характерной температурой может быть температура блокировки. По положениям пиков были найдены две температуры $T_b(0) = 177$ К и $T_{b1}(0) = 336$ К. В то же время, только один пик производной $M(T)$ в цикле ZFC и, соответственно, только одна температура блокировки наблюдается в образце ГП толщиной 9000 Å, и она равняется $T_b(0) = 24$ К. При увеличении приложенного магнитного поля температуры блокировки понижаются, что и ожидалось для суперпарамагнитных систем (Рис. 3.8).

3.2.3 Гранулированная плёнка SiO₂(Co) на Si

Петли намагничивания образца SiO₂(54 ат.% Co) / Si в диапазоне полей $B = -5000...5000$ мТ, приложенных в плоскости плёнки при комнатной температуре представлены на Рис.3.9 с вычтенным линейным диамагнитным вкладом от Si подложки и матрицы SiO₂. Абсолютные значения намагниченности образца хорошо согласуются с данными для ГП на подложках из арсенида галлия. Стоит отметить специфический вид кривой намагничивания в диапазоне полей $B = 1000...5000$ мТ, в котором

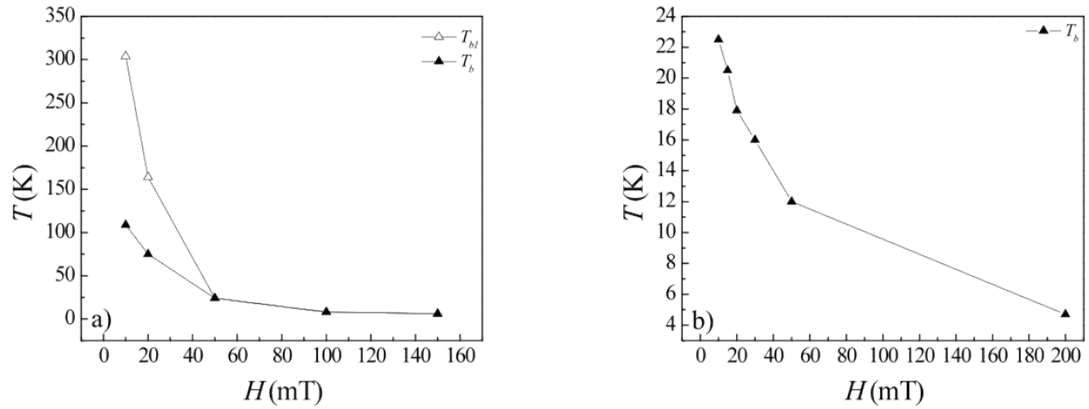


Рисунок 3.8 — Зависимость температуры блокировки от величины приложенного магнитного поля H для образцов а) Au/SiO₂(75 ат.% Co)/GaAs 900 Å б) SiO₂(54 ат.% Co)/GaAs 9000 Å

присутствует дополнительная гистерезисная петля “карман”, в то время как в малых полях гистерезис не наблюдается.

Температурные зависимости намагниченности в диапазоне от 2 К до 350 К были измерены в двух режимах ZFC и охлаждение в поле $B = 200$ мТ FC. Фактически режим ZFC был реализован во время нагрева образца в нулевом поле после измерения FC для ускорения измерений. Расхождение кривых FC и ZFC при температуре $T = 30$ К свидетельствует о том, что система находится в суперпарамагнитном состоянии. Сдвиг температуры блокировки в сторону низких температур по сравнению с данными для образцов SiO₂(Co) / GaAs произошёл из-за различных значений приложенных полей в ZFC цикле. По этой причине не наблюдается второго пика производной кривой намагниченности $M_{ZFC}(T)$ (Рис. 3.11) от интерфейсного слоя.

3.3 Рефлектометрия поляризованных нейтронов

3.3.1 Экспериментальные установки PNR и ADAM

Эксперименты по рефлектометрии поляризованных нейтронов на образцах SiO₂(Co) / GaAs проводились на нейтронном реакторе FRG исследовательского центра GKSS Forschungszentrum (Гестахт, Германия) на

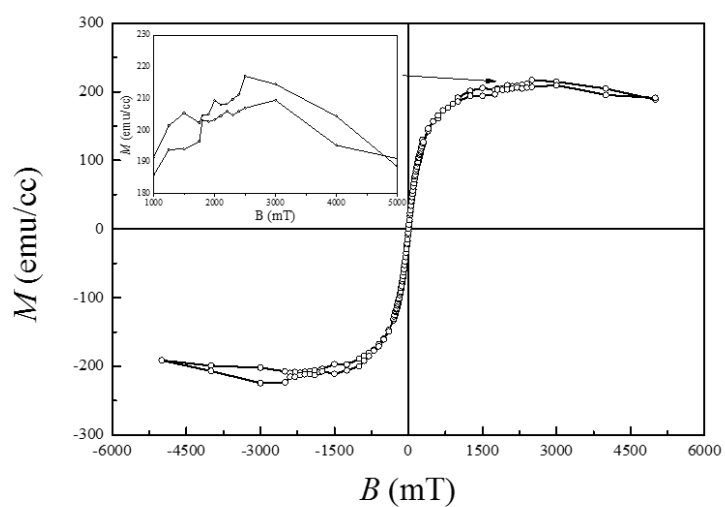


Рисунок 3.9 — Кривая намагниченности образца $\text{SiO}_2(54 \text{ ат.}\% \text{ Co}) / \text{Si}$ при комнатной температуре. На вставке выделена область кривой в диапазоне полей $B = 1000..5000$ мТ.

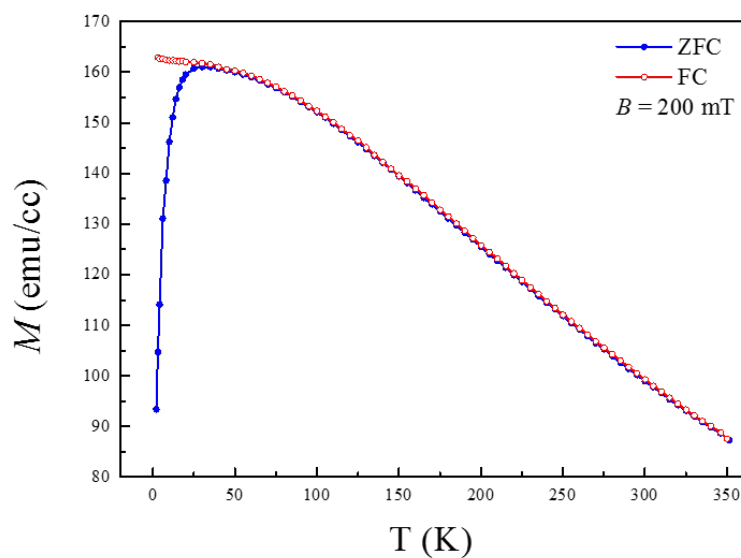


Рисунок 3.10 — Зависимость намагниченности образца $\text{SiO}_2(54 \text{ ат.}\% \text{ Co}) / \text{Si}$ от температуры в циклах FC / ZFC.

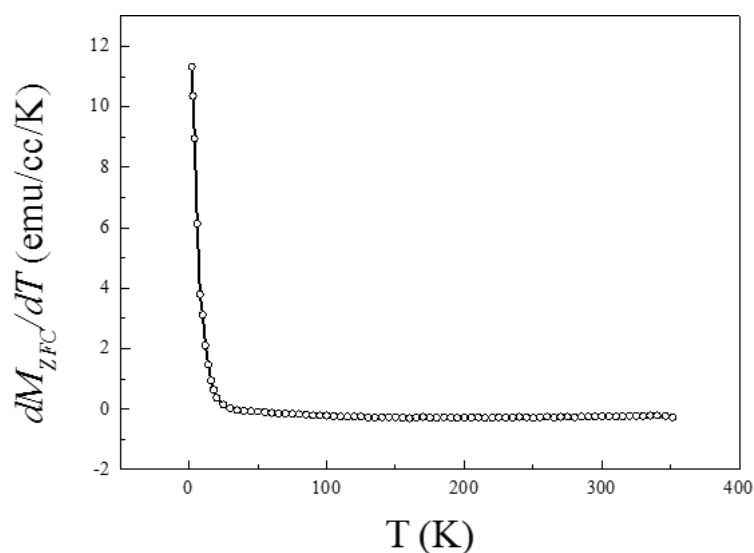


Рисунок 3.11 — Зависимость первой производной намагниченности образца $\text{SiO}_2(54 \text{ ат.}\% \text{ Co}) / \text{Si}$ от температуры в цикле ZFC.

инструменте PNR (англ. Polarized Neutrons Reflecometer). Блок-схема экспериментальной установки представлена на Рис. 3.12. На установке PNR монохроматизация пучка нейтронов осуществлялась селектором скоростей, монохроматором, который относится к типу времяпролётных (англ. time-of-flight, TOF) приборов. Принцип работы селектора скоростей подразумевает наличие двух или нескольких вращающихся с определённой частотой пластинок со щелями, пропускающих нейтроны со скоростями (и, соответственно, длинами волн) лежащими в диапазоне определённых значений. В представленном эксперименте были использованы длины волны нейтронов $\lambda = 6.35 \text{ \AA}$ с точностью монохроматизации $\Delta\lambda/\lambda = 0.05$. Для поляризации нейтронного пучка, выходящего из нейтроновода, использовалось суперзеркало (англ. supermirror) – многослойная структура, состоящая из чередующихся поляризующих и немагнитных слоёв, помещённая во внешнее магнитное поле и пропускающее сквозь себя нейтроны с поляризацией спина вдоль магнитного поля, и, соответственно, отражающее нейтроны с поляризацией спина против направления магнитного поля. Таким образом, изначально неполяризованный пучок был расщеплён на два поляризованных, один из которых был отражён на образец, а второй поглощён стенкой суперзеркала.

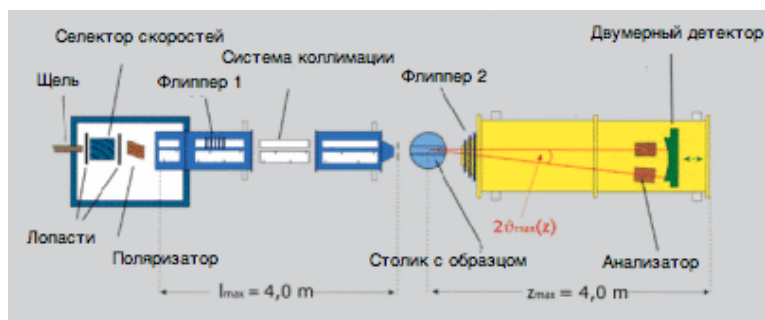


Рисунок 3.12 — Схема рефлектометра поляризованных нейтронов PNR.

После прохождения через поляризующую систему, поляризация монохроматического пучка нейтронов составляла $P_0 = 0.95$. Коллимация пучка обеспечивалась двумя регулируемыеми системами щелей, которые позволяют сформировать пучок нейтронов шириной от десятых долей миллиметра до 10 мм и уменьшающими его расходимость. Высота пучка на установке PNR определяется высотой окна нейтронотода и составляет величину порядка 3-4 см. Направление поляризации сформированного монохроматического нейтронного пучка может управляться при помощи спин-флиппера (англ. spin-flipper). В данной установке использовался радиочастный спин-флиппер, то есть катушка индуктивности с пространственно модулированным магнитным полем. Создаваемое в нём переменное магнитное поле индуцирует прецессию спинов пучка поляризованных нейтронов. Соответственно, для заданного значения дебройлевской длины волны нейтронов, и рассчитав время пролёта пучка через спин-флиппер, можно подобрать нужную частоту ларморовской прецессии поля для поворота спинов в нужном направлении. В настоящем эксперименте были использованы оба направления поляризации. Узел образца оснащен электромагнитом с водным охлаждением, создающим внешнее магнитное поле на образце от 0 до 1 Т, и гелиевым криостатом замкнутого цикла, позволяющим исследовать фазовые переходы в диапазоне температур от 10 К до 450 К. Отражающая плоскость образца устанавливается вертикально, параллельно оси рефлектометра. Экспериментальный гониометр, вращается в плоскости на угол θ , и, тем самым, достигается изменение угла отражения, и, соответственно, величины переданного импульса нейтрона. После акта рассеяния отражённый пучок попадает

в анализатор энергии (в случае представленных экспериментов не использовался, так же как и второй спин-флиппер, который отвечает за детектирование сигнала с переворотом спина) и, затем, в двумерный гелиевый ПЧД 256 на 256 пикселей. Магнитное поле прикладывалось в плоскости образца и менялось в диапазоне $0 \leq H \leq 30$ мТ. Интенсивность отражения для нейтронов с поляризацией вдоль приложенного поля обозначается $I(+P_0)$, противоположной, соответственно, $I(-P_0)$.

Эксперименты на образцах $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{Si}$ проводились на установке ADAM в Институте Лауэ-Ланжевена (ILL, Гренобль, Франция). По принципу работы и конструкции установка незначительно отличается от рефлектометра PNR. Существенным отличием является то, что, на приборе был установлен монокристалльный монохроматор, а не селектор скоростей. В результате прибор обладал более высоким разрешением по длине волны $\Delta\lambda/\lambda = 0.01$, и, соответственно по переданному импульсу Q_z .

3.3.2 Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на GaAs

Измерения рефлектометрии поляризованных нейтронов проводились на образце $\text{Au}/\text{SiO}_2(75 \text{ at.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$, где верхний слой золота Au был напылён в качестве электрического контакта для измерений магнитосопротивления. Эксперименты проводились при температурах $T = 300$ К, то есть в области максимума эффекта ГИМР по температуре, и при $T = 120$ К, где величина эффекта ГИМР составляет единицы процентов. После каждого измерения пары кривых отражения для двух поляризаций производился процесс размагничивания образца для устранения остаточной намагниченности. Для этого последовательно прикладывалось магнитное поле противоположных направлений с уменьшением амплитуды в каждом последовательном шаге.

В нулевом магнитном поле не наблюдалось разницы (расщепления) между кривыми интенсивности отражения $I(+P_0)$ и $I(-P_0)$ для нейтронов с соответствующей начальной поляризацией $+P_0$ и $-P_0$, что свидетельствует о нулевом значении суммарной намагниченности образца (Рис. 3.13). Приложение внешнего магнитного поля приводит к изменению нейтронно-

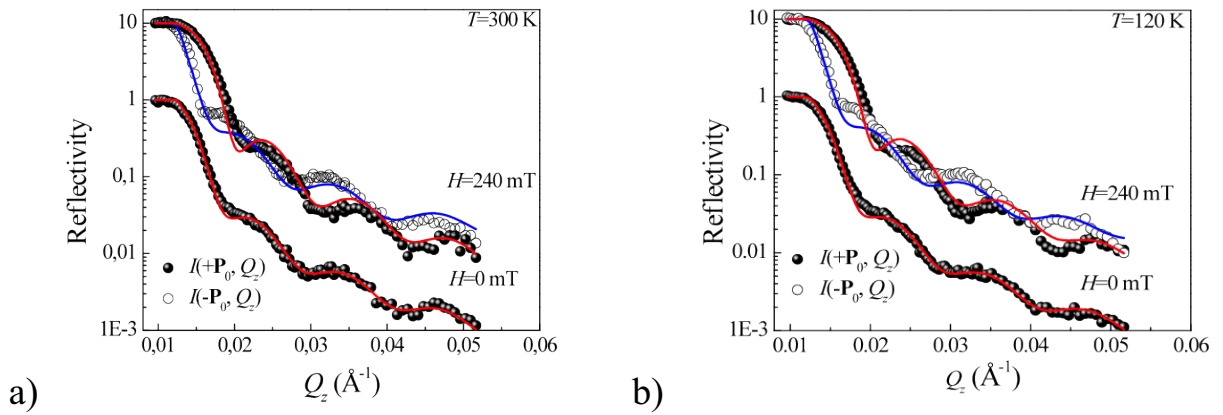


Рисунок 3.13 — Экспериментальные (символы) и рассчитанные (сплошные линии) кривые рефлектометрии для образца Au/SiO₂(75 at.% Co)/GaAs в полях $H = 0$ и $H = 240$ мТ при температурах а) $T = 300$ К и б) $T = 120$ К. В случае поля все кривые $H = 240$ мТ помножены на 10 для удобства представления данных.

оптического потенциала плёнки за счёт появления магнитного рассеяния, что наглядно выражается в расщеплении кривых $I(+P_0)$ и $I(-P_0)$.

Для обработки экспериментальных данных и построения модели нейтронно-оптического потенциала (SLD-профиля) использовался рекурсивный метод Парратта [64], реализованный в программном пакете Parratt32, разработанном в исследовательском центре BESSY (Германия). Расчётная модель, наилучшим образом описывающая экспериментальные данные, состояла из четырёх подслоёв плёнки на подложке GaAs в следующем порядке, начиная от интерфейса воздух / поверхность ГП:

Таблица 3.1 — Параметры модели плёнки Au/SiO₂(75 at.% Co)/GaAs

Слой	d, Å	$N_n \cdot 10^6,$ Å ⁻²	$N_m \cdot 10^7$ (300 K), Å ⁻²	$N_m \cdot 10^7$ (120 K), Å ⁻²	H, мТ
Au	20	4.5	0	0	0..240
GF1	24	6.1	0	0	0..240
GF2	439	3.80	0	0	0
	375	3.80	6.1	6.9	240
GF3	0	3.80	0	0	0
	61	3.80	1.6	3.3	240
GaAs	∞	3.2	0	0	0..240

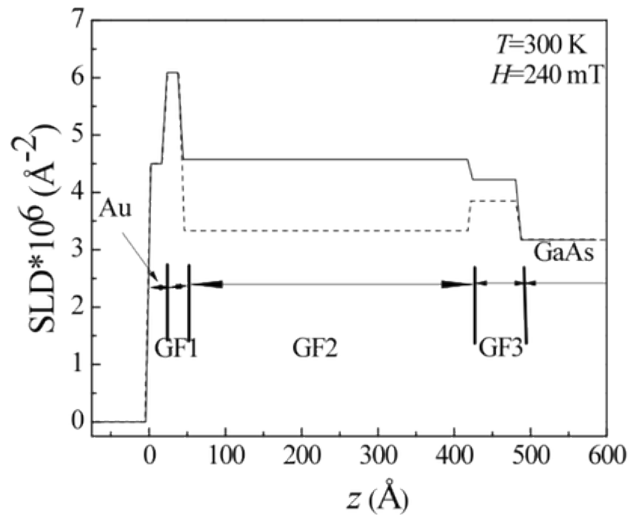


Рисунок 3.14 — Профиль плотности длины рассеяния ρ^+ (сплошная линия) и ρ^- (пунктирная линия) образца Au/SiO₂(75 at.% Co)/GaAs в поле $H = 0.24$ Т при $T = 300$ К.

- контактный слой золота (Au);
- первый слой ГП (GF1);
- второй ("объёмный") слой ГП (GF2);
- интерфейсный слой ГП (GF3).

Каждый слой ГП в расчётной модели обладает следующими независимыми параметрами: толщина (d), шероховатость (σ), ядерная и магнитная плотности длины рассеяния (SLD, ρ) $N_n = \rho^+ + \rho^-$ и $N_m = \rho^+ - \rho^-$, соответственно. N_m имеет противоположный знак для различных поляризаций нейтронов $+\mathbf{P}_0$ и $-\mathbf{P}_0$, а её величина прямо пропорциональна намагниченности M слоя в направлении вдоль приложенного поля:

$$M = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n\mu_n} \frac{N_m}{4\pi} = 3.44 \cdot 10^8 N_m, \quad (3.2)$$

где m_n – масса нейтрона, μ_n – магнитный момент нейтрона.

Толщина подложки считается бесконечно большой. Профиль плотности длины рассеяния (SLD-профиль) характеризует распределение суммарного

ядерного и магнитного рассеивающего нейтронно-оптического потенциала слоёв образца в направлении нормали к поверхности (направлении z). SLD-профиль плёнки Au/SiO₂(75 at.% Co) на подложке GaAs при температурах $T = 300$ К и $T = 120$ К показан на Рис. 3.3.2. И в том и в другом случаях, видно, что во всём диапазоне приложенных магнитных полей $H = 0...320$ мТ в образце намагничиваются только слои GF2 и GF3, тогда как GF1 магнитного момента не приобретает. Наиболее вероятным объяснением данному факту является то, что из-за близости к поверхности ГП слой GF1 состоит из наночастиц кобальта, подвергшихся окислению. Слоя золота данной толщины было недостаточно для предотвращения этого процесса. К тому же, пропускание через образец электрического тока при измерениях ГИМС является агрессивным фактором, способствующим окислению. Так как при комнатной температуре оксид кобальта имеет антиферромагнитное упорядочение (наноразмерные частицы образуют структуру ферромагнитное ядро / антиферромагнитная оболочка [77, 78]), которое может быть разрушено только при величине приложенного поля порядка 10 Т (спин-флоп переход), то в данных приложенных полях макроскопического момента слой GF1 не приобретает.

Исследование с помощью рефлектометрии поляризованных нейтронов подтвердило наличие у структуры обособленного слоя на интерфейсе GF3, существование которого ранее было показано методом GISAXS.

В Таблице 3.1 приведены структурные параметры слоёв модели, рассчитанные при помощи подгонок методом Парратта при температурах $T=300$ К и $T=120$ К. Суммарная толщина ГП составляет 513 Å, что хорошо согласуется с номинальным значением, оценённым из времени напыления образца (500 Å). Будет уместным отметить, что при нулевом внешнем магнитном поле значения SLD слоёв GF2 и GF3 очень близки, т. е. их ядерные рассеивающие потенциалы практически совпадают, что говорит об их близком химическом составе. Однако при в магнитном поле появляется ненулевое и различное для GF2 и GF3 слагаемое N_m , что приводит к увеличению контраста рассеивающего потенциала, и, соответственно, к разрешению этих слоёв.

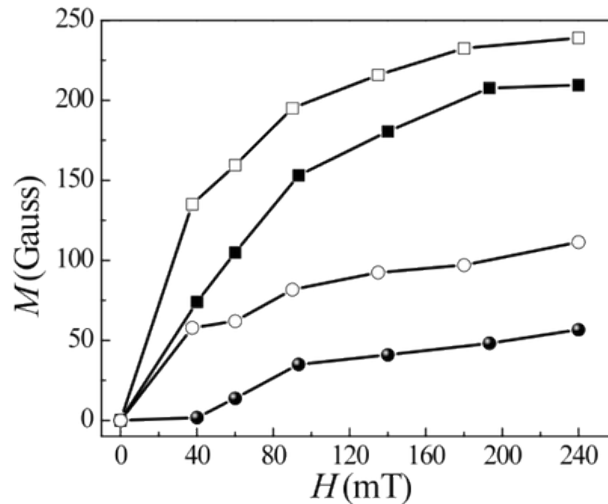


Рисунок 3.15 — Зависимость намагниченности от приложенного поля, рассчитанная согласно формуле (3.2) для слоёв GF2 и GF3 образца Au/SiO₂(75 at.% Co)/GaAs. Белые квадраты соответствуют данным для GF2 при 120 К, чёрные квадраты – GF2 при 300 К, белые круги – GF3 при 120 К, чёрные круги – GF3 при 300 К.

Изменение температуры приводит только к изменению магнитной плотности длины рассеяния N_m слоёв GF2 и GF3 в сторону увеличения, что хорошо согласуется с результатами SQUID магнитометрии и общим тезисом о суперпарамагнитном состоянии исследованных систем – при снижении температуры наблюдается скейлинг поведения зависимости намагниченности от приложенного поля.

На Рис. 3.15 представлены намагниченности слоёв GF2 и GF3, вычисленные по формуле Ур. в зависимости от величины приложенного поля H при температурах $T=300$ К и $T=120$ К. Намагниченность насыщения слоя GF2 и его магнитная восприимчивость слабо изменяются с понижением температуры до 120 К. Интерфейсный слой GF3 намагничивается при $T=120$ К в два раза сильнее чем при $T=300$ К. Кроме того, зависимость $M(H)$ для него имеет более резкий характер, то есть увеличивается его восприимчивость к магнитному полю.

Толщина интерфейсного слоя $d_{GF3} = 61 \text{ \AA}$ хорошо согласуется с данными GISAXS и рентгеновской рефлектометрии, представленными ранее.

3.3.3 Гранулированная плёнка $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на Si

Кривые отражения поляризованных нейтронов $R^{++}(+P_0, Q_z)$ и $R^{--}(+P_0, Q_z)$ представлены на Рис.3.16. Без приложения к образцу $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{Si}$ магнитного поля не наблюдалось расщепления между кривыми интенсивности отражения нейтронов с противоположными начальными поляризациями $R^{++}(+P_0, Q_z)$ и $R^{--}(+P_0, Q_z)$, что свидетельствует о нулевом значении намагниченности образца. Приложение поля $B = 240$ мТ приводит к намагничиванию плёнки, что выражается в расщеплении кривых. Для обработки экспериментальных данных использовался рекурсивный метод Парратта, реализованный в программном пакете GenX [79], разработанном в Университете Уппсалы (Швеция). В модели были теоретически рассчитаны ядерные плотности длины рассеяния слоёв и подложки, которые могли варьироваться на величину $\pm 10\%$. Кроме того, при обработке были учтены поправки на площадь образца и ширину изначального нейтронного пучка, сдвиг нулевого значения угла падения, фон, разрешение установки. Таким образом удалось достичь отличного соответствия экспериментальных кривых отражения и рассчитанных моделей.

Полная толщина плёнки составила $D = 524 \text{ \AA}$. Модель, наилучшим образом описывающая экспериментальные данные, состояла из четырёх подслоёв плёнки на подложке Si в следующем порядке, начиная от интерфейса воздух – поверхность плёнки ($z = 0$):

- покрывающий слой золота;
- первый слой гранулированной плёнки (Layer 1);
- второй ("объёмный") слой плёнки (Layer 2);
- интерфейсный слой на границе ГП / Si (Layer 3).

Соответствующий профиль плотности длины рассеяния представлен на Рис.3.17. В поле $B = 240$ мТ ненулевое значение магнитной плотности длины рассеяния наблюдается только у слоёв Layer 2 и Layer 3, а верхний слой ГП Layer 1 магнитного момента не приобретает. Намагниченность слоёв Layer 2 и Layer 3, согласно формуле 3.2 составляет $M_2 = 258 \text{ emu/cm}^3$ и M_3

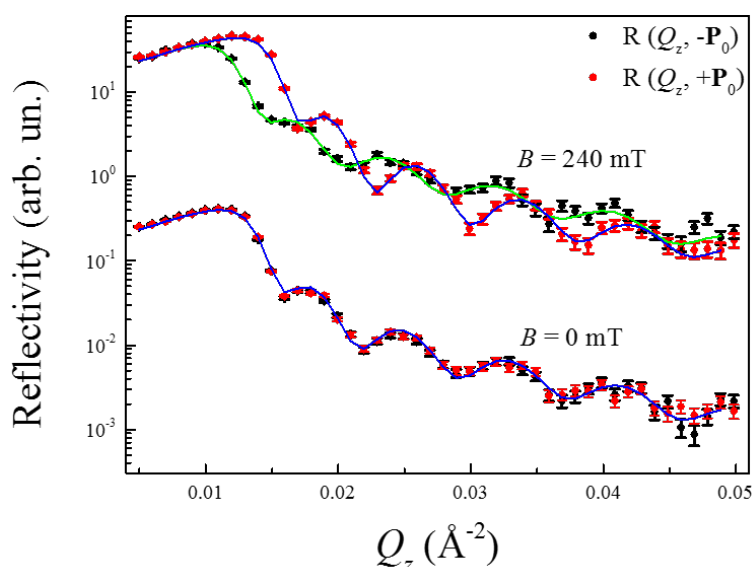


Рисунок 3.16 — Экспериментальные (символы) и рассчитанные (сплошные линии) рефлектометрические кривые для образца $\text{SiO}_2(54 \text{ at.}\% \text{ Co}) / \text{Si}$ в полях $B = 0$ и $B = 240$ мТ при комнатной температуре. В случае поля все кривые $B = 240$ мТ помножены на 100 для удобства восприятия.

$= 52 \text{ emu/cm}^3$, соответственно. Зависимость величины намагниченности от приложенного поля B показана на Рис. 3.18.

3.4 Обсуждение результатов

3.4.1 Гранулированные плёнки $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{GaAs}$

Независимыми методами исследования рассеяния СИ и поляризованных нейтронов было показано разделение ГП на два слоя. В то же время, SQUID магнитометрия продемонстрировала две температуры блокировки наночастиц в образце. Логично сопоставить две температуры блокировки обособленным объёмному и интерфейсному структурным слоям. При обсуждении результатов экспериментов SQUID магнитометрии, необходимо заметить, что температура блокировки T_b в плёнке $\text{SiO}_2(54 \text{ at.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ толщиной 900 нм ниже температуры блокировки в плёнке $\text{Au}/\text{SiO}_2(75 \text{ at.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ толщиной 90 нм с меньшей концентрацией кобальта. Эту разницу легко объяснить меньшим размером наночастиц в случае концентрации кобальта 54 ат.%. Действительно, в работе [20] было продемонстрировано,

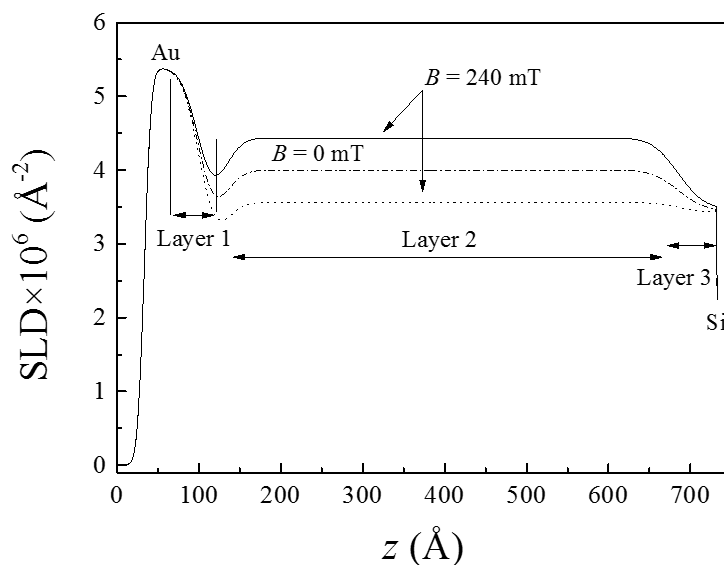


Рисунок 3.17 — Профиль плотности длины рассеяния ρ^+ (сплошная линия) и ρ^- (пунктирная линия) образца $\text{SiO}_2(54 \text{ at.}\% \text{ Co}) / \text{Si}$ в полях $B = 0$ и $B = 240$ мТ при комнатной температуре.

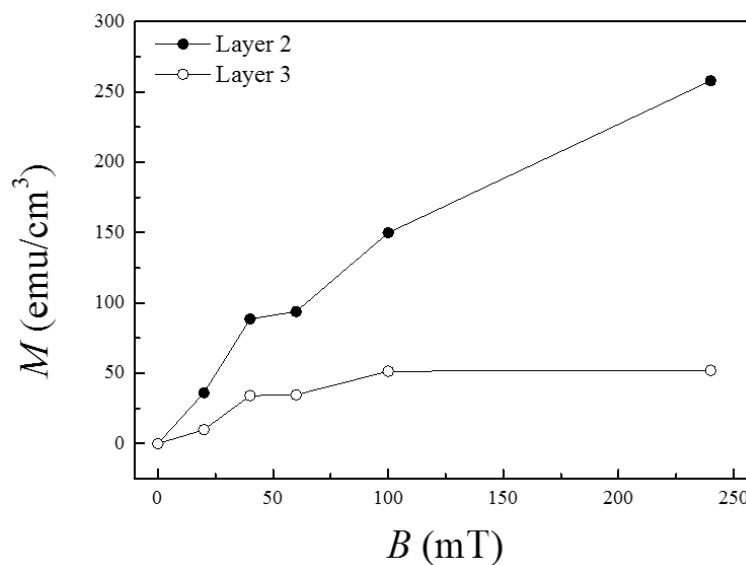


Рисунок 3.18 — Зависимость намагниченности от приложенного поля, рассчитанная согласно формуле (3.2) для слоёв Layer 2 и Layer 3 образца $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{Si}$. Чёрные кружки соответствуют данным для Layer 2, белые кружки – Layer 3 при комнатной температуре.

что средний размер наночастиц в гранулированной плёнке SiO_2 (x ат.% Co)/ зависит от концентрации кобальта: при 50 ат. % кобальта диаметр наночастиц составляет 35 \AA , а при увеличении концентрации до 75 ат. % Co диаметр составляет 65 \AA , что хорошо согласуется с данными представленными в данной работе GISAXS экспериментов для ГП на GaAs и Si подложках. Согласно экспериментальным данным, полученным методом GISAXS, среднее межчастичное расстояние в интерфейсном слое составляет $d = 320 \text{ \AA}$, а в объёмном слое – $d = 70 \text{ \AA}$. В предположении, основанном на независимых данных работы [20] о том, что в ГП с концентрацией кобальта 75 ат. % размер частиц равняется среднему межчастичному расстоянию между ними, наличие двух температур блокировки логично связать с различными объёмами частиц в двух разных слоях плёнки.

Помимо объёма наночастиц и их анизотропии, температура блокировки зависит от взаимодействия между ними, в первую очередь диполь-дипольного взаимодействия. В приближении самосогласованного поля Вайсса можно показать, что:

$$T_b = \frac{\langle S \rangle^2 nJ}{3k_B}, \quad (3.3)$$

где $\langle S \rangle$ – средний магнитный момент частицы, J – энергия взаимодействия между частицами, n – число ближайших соседей, k_B – постоянная Больцмана [80]. Средний магнитный момент $\langle S \rangle$ пропорционален объёму наночастицы, следовательно, величина T_B увеличивается для частиц большего размера. В данном предположении не учитывается возможное влияние анизотропии частиц, в особенности анизотропии формы, поэтому количественные оценки температуры блокировки не проводятся. Действительно, при диаметре частиц в интерфейсном слое $d = 320 \text{ \AA}$ и толщине слоя $h = 70 \text{ \AA}$, частица имеет форму приплюснутого эллипсоида, а, значит, и существенную анизотропию формы.

Кривая зависимости намагниченности $M(H)$ от поля, представленная на Рис.3.5 имеет характерные особенности в виде дополнительной петли гистерезиса в области намагниченности насыщения, связанные с наличием двух или нескольких различных магнитных подсистем (“карманы”). Можно предположить, что наночастицы меньшего объёма

с диаметром 70 \AA намагничиваются до насыщения в относительно слабых полях $0 < B < 0.5 \text{ Т}$. Необходимо, при этом, заметить, что намагниченность насыщения слоя GF2, полученная методом рефлектометрии, в пять раз меньше насыщения объёмного кобальта, и его поле насыщения на порядок меньше, чем те, в которых наблюдается эффект ГИМС. В то же время, ансамбль сильно анизотропных наночастиц на интерфейсе демонстрирует гистерезисное поведение в полях $0.8 - 2 \text{ Т}$ ("карманы" на Рис. 3.5). Это также может быть связано с проявлением осциллирующего взаимодействия РККИ-типа посредством электронов проводимости приповерхностного слоя полупроводника, которое было описано в работе [21]. Так, если расстояние между частицами на интерфейсном слое ГП / подложка соответствует положительному интегралу РККИ-подобного взаимодействия, то магнитные моменты наночастиц стремятся к антиферромагнитному упорядочению, что приводит к увеличению коэрцитивной силы слоя наравне с анизотропией формы частиц и их объёмом. В работе [81] были исследованы замкнутые кольца из самоорганизованных наночастиц кобальта, связанных магнитным диполь-дипольным взаимодействием, демонстрирующие подобные гистерезисные петли. Методом спин-поляризованной электронной голографии авторами было показано, что вектор намагниченности отдельных монодоменных наночастиц, под действием дипольных сил, замыкается таким образом, что суммарный вектор намагниченности системы равен нулю. Таким образом, процесс перемагничивания происходит скачкообразным образом в поле около 1600 Э . Возможно, подобный механизм имеет место и в нашем случае.

Толщина интерфейсного слоя плёнки GF3 определяется физико-химическими процессами совместного напыления кобальта и SiO_2 на арсенид-галлиевую подложку на ранней стадии роста. Таким образом, толщина этого интерфейсного слоя не зависит от толщины всей плёнки, а его вклад в интегральную намагниченность одинаков для всех образцов данного типа. В то же время, вклад слоя GF2 в суммарную намагниченность, измеренную SQUID-магнетометром, очевидно, пропорционален толщине гранулированной плёнки. Поэтому в случае образца толщиной 9000 \AA гистерезисные "карманы" выражены гораздо менее чётко, чем в случае 900 \AA образца (Рис.

3.5). По тем же причинам только одна температура блокировки, связанная с объёмным слоем наночастиц, зафиксирована для более толстого образца.

3.4.2 Неоднородные плёнки $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{Si}$

Экспериментальные данные GISAXS однозначно показывают, что в гетероструктуре $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{Si}$ сосуществуют две подсистемы наночастиц с различными средними межчастичными расстояниями $l_1 = 70 \text{ \AA}$ и $l_2 = 306 \text{ \AA}$ в объёме плёнки и на интерфейсе ГП / Si, соответственно. В то же время, согласно данным рефлектометрии поляризованных нейтронов, плёнка разделена на три подслоя. Таким образом, логично ассоциировать Layer 2 и Layer 3 с объёмной и интерфейсной частями плёнки. Такое предположение также подтверждается меньшей намагниченностью интерфейсного слоя по сравнению с объёмным из-за более слабого диполь-дипольного взаимодействия между наночастицами как следствие большего расстояния между ними. Вероятно, необычный вид петли намагниченности образца связан с поэтапным намагничиванием двух подсистем ГП с разной коэрцитивностью. Полученное при помощи СКВИД магнитометрии значение намагниченности насыщения плёнки $M_s = 220 \text{ emu/cm}^3$ существенно отличается от намагниченности насыщения объёмного кобальта $M_{\text{Co}} = 1422 \text{ emu/cm}^3$ [76], что объясняется отсутствием обменного взаимодействия между отдельными гранулами ферромагнетика. Нулевая намагниченность слоя ГП Layer 1 является следствием окисления верхнего слоя наночастиц кобальта из-за недостаточного покрытия верхнего слоя золота. При комнатной температуре оксид кобальта CoO имеет антиферромагнитное упорядочение (наночастицы образуют структуру ядро / оболочка) с температурой Нееля $T_N = 291 \text{ K}$ [82]. Таким образом слой Layer 1 может быть либо парамагнитным либо антиферромагнитным.

3.4.3 Обобщение результатов

В выполненной работе представлены эксперименты по рассеянию рентгеновских лучей в скользящей геометрии, рефлектометрии поляризованных нейтронов и SQUID-магнитометрии. Проведённые

эксперименты показали, что в гранулированной плёнке $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на подложке GaAs существует интерфейсный слой наночастиц с увеличенным по сравнению с основным объёмом плёнки межчастичным расстоянием. Полученные в данной работе структурные и магнитные свойства гетероструктуры $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{Si}$ 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 полупроводника на границе ГП / подложка, чем от интегральных магнитных характеристик и структуры плёнки. Данный вывод согласуется с недавними оптическими экспериментами [83] и теоретическими расчётами, опубликованными в работе [21]. Данная теория, однако, не учитывает неоднородность ГП по глубине и может быть несколько пересмотрена. Результаты экспериментов показывают важность комбинирования локальных и интегральных методов исследования структуры и магнитных свойств нанообъектов. Стоит отметить, что все представленные экспериментальные данные были репродуцированы для образцов из разных серий напыления, что говорит о статистической значимости результатов. Кроме того, обнаружение интерфейсного монослоя в $\text{SiO}_2(\text{Co}) / \text{GaAs}$ структурах могло быть обнаружено в работе [84], в которой для изучения доменной структуры использовалась методика GISANS. Однако, пики рассеянию от монослоя не были интерпретированы.

Эффект ГИМС – многопараметрическая задача, и для дальнейшей разработки теоретических моделей необходимо учитывать структурную и магнитную неоднородность гранулированной плёнки.

Глава 4

Многослойные неоднородные магнитные наноструктуры

Многослойные неоднородные магнитные наноструктуры $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$ и $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]$ с различных значениях толщины полупроводниковой прослойки a-Si и C были исследованы методами SQUID магнитометрии, Магнитооптического эффекта Керра, четырёхконтактным методом измерения электрического сопротивления, GISAXS рассеянием и рефлектометрией поляризованных нейтронов.

4.1 SQUID и MOKE магнитометрия, электрическое сопротивление

4.1.1 Многослойные наноструктуры $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$

В настоящей главе 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

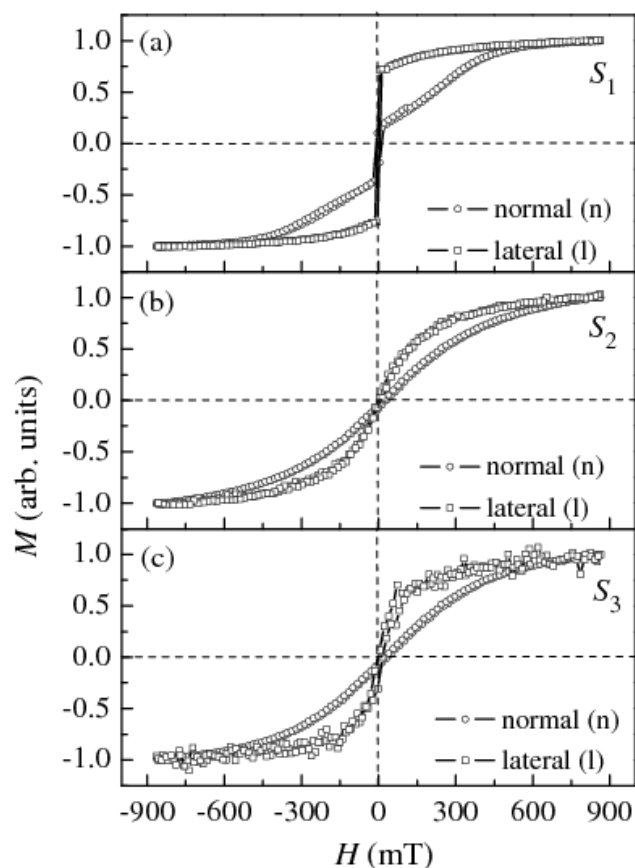


Рисунок 4.1 — Измерение намагниченности методом магнитооптического эффекта Керра в плоскости (l) и перпендикулярно плоскости (n) для образцов (a) S_1 , (b) S_2 и (c) S_3 .

– образец S_3) и концентрацией $x = 35$ ат. %, что ниже порога перколяции металла.

Намагниченность наноструктуры $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$ была изучена методом магнитооптического эффекта Керра при приложении магнитного поля $B = -850 \dots 850$ мТл в плоскости (l) и перпендикулярно плоскости образцов (n) (Рис.4.1). Из рисунка видно, что все три образца S_1 , S_2 и S_3 лучше намагничиваются в плоскости, чем в перпендикулярном направлении и что образец S_2 намагничивается хуже двух других и в плоскости, и перпендикулярно ей.

Исследования транспортных свойств четырёхконтактным методом образцов показали, что на зависимости электрического сопротивления,

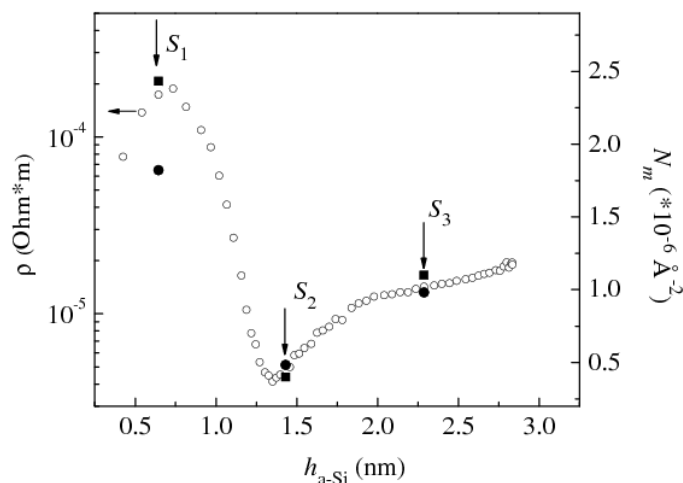


Рисунок 4.2 — На левой оси приведено сопротивление многослойных наноструктур $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$, измеренное в плоскости плёнок. Открытыми кружками показано сопротивление всех образцов серии, заполненными кружками – трёх исследованных образцов. На правой шкале (заполненные квадратики) приведена магнитная плотность длины рассеяния N_m для трех образцов S_1 , S_2 и S_3 при $B = 700$ мТл

измеренного в плоскости образцов, от толщины кремниевого слоя наблюдается минимум, соответствующий наименее намагниченному образцу S_2 с толщиной полупроводникового слоя 0.4 нм (Рис.4.2). Очевидно, что сопротивление и магнитное упорядочение в образцах скоррелированы.

4.1.2 Многослойные наноструктуры $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$

Методом SQUID 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 С (0.4 нм – образец S_1 ; 1.7 нм – образец S_2 ; 1.8 нм – образец S_3). Эксперимент проводился на установке Quantum Design MPMS-5S SQUID Magnetometer в Техническом Университете Дельфта (TU Delft, Дельфт, Голландия). Кривые намагниченности представлены на Рис. 4.3. Образцы не демонстрируют

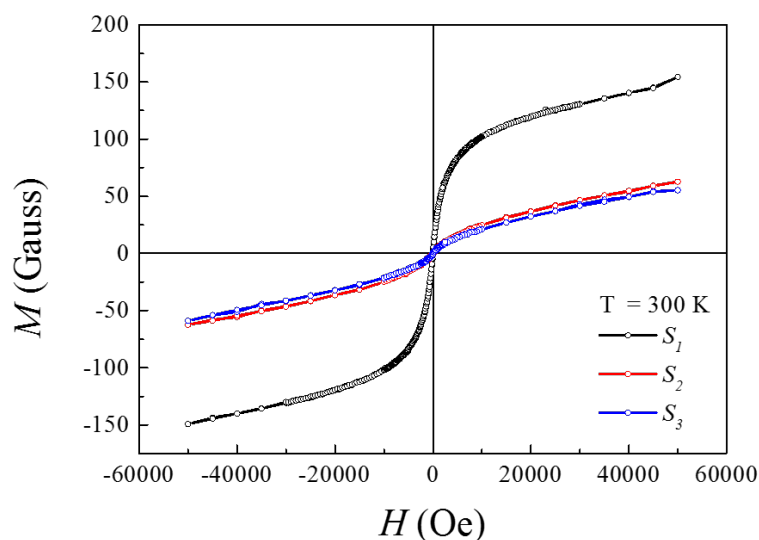


Рисунок 4.3 — Зависимость намагниченности образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ с различной толщиной углеродной прослойки M от приложенного поля H при комнатной температуре.

насыщения вплоть до максимальных приложенных полей $H = 50$ кЭ. Кроме того, коэрцитивная сила очень мала. Совокупность этих фактов позволяет судить о том, что образцы находятся в суперпарамагнитном состоянии. Но 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 $M(T)$. Цикл FC был измерен в поле $H = 100$ Э. Температура блокировки была найдена как точка перегиба кривой $M(T)$ (Рис. 4.4). В результате для образца S_1 $T_{b_1} = 15$ К, тогда как для образцов S_2 и S_3 $T_{b_2} = T_{b_3} = 7$ К.

Зависимость электрического сопротивления от толщины углеродной прослойки при различных температурах была исследована в работе [41]. График зависимости представлен на Рис. 4.5. Механизм проводимости плавно меняется от по мере роста сплошной ПП прослойки. Температурные зависимости проводимости были измерены для образцов S_1 и S_3 вплоть до температур жидкого азота. Как для высокооммического образца S_1 (Рис. 4.5b), так и для образца S_3 (Рис. 4.5c) с меньшим сопротивлением, имеет место прыжковая проводимость с характерной экспоненциальной зависимостью

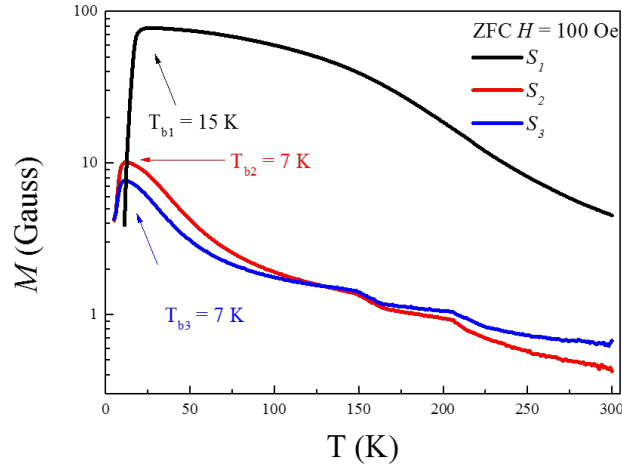


Рисунок 4.4 — Температурная зависимость намагниченности образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 , S_2 , S_3 , измеренная в поле $H = 100$ Э.

[85]:

$$R = R_0 e^{(T_0/T)^\gamma}, \quad (4.1)$$

где R_0 и T_0 – константы, γ – показатель экспоненты, зависящий от конкретного механизма прыжковой проводимости: в случае туннелирования носителей заряда между локализованными состояниями $\gamma = 1/2$ (закон Шкловского-Эфроса [86]) и $\gamma = 1/4$ в случае классического перехода металл – диэлектрик (закон Мотта [85]). Экспериментальные результаты представлены на Рис.4.5b,c. Температурная зависимость сопротивления высокоомного образца S_1 удовлетворительно описывается законом Шкловского-Эфроса $R \sim \exp(T_0/T)^{1/2}$. Однако, при температуре $T \approx 135$ К происходит кроссовер между режимами проводимости и при $T < 135$ К сопротивление описывается законом Мотта $R \sim \exp(T_0/T)^{1/4}$ (см. вставку на Рис.4.5b). В то же время, сопротивление низкоомного образца S_3 может быть с достаточной степенью точностью аппроксимировано при помощи закона Шкловского-Эфроса (Рис. 4.5c).

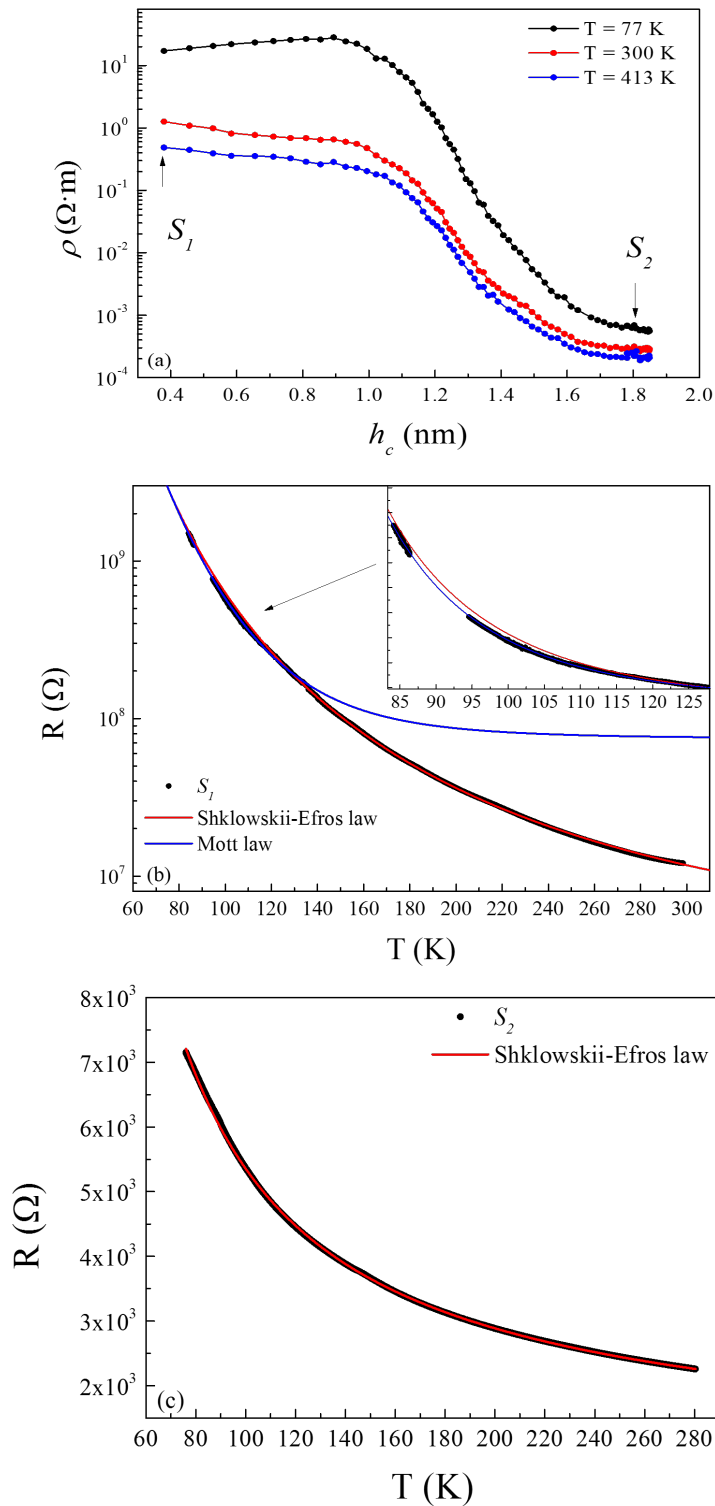


Рисунок 4.5 — (а) Температурная удельного сопротивления намагниченности образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ в зависимости от толщины слоя С, измеренная четырёхконтактным методом при различных температурах [41].

(б) Температурная зависимость сопротивления образца $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 . На вставке изображена область кроссовера между типами проводимости Шкловского-Эфроса и Мотта. (с)

Температурная зависимость сопротивления образца

$[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_3 .

4.2 GISAXS

Можно предположить, что немонотонный характер изменения магнитных и транспортных свойств исследованных многослойных наноструктур определяется сложной морфологией составляющих ее слоёв, то есть размером и формой металлических гранул в индивидуальном металл-диэлектрическом слое и расстоянием между ними. Для исследования морфологии пленок использовали метод малоуглового рассеяния синхротронного излучения в скользящей геометрии. Метод позволяет анализировать распределение неоднородностей (в нашем случае металлических гранул) по размерам и их пространственную организацию, что осуществляется за счет значительного улучшения поверхностной чувствительности при ориентации образца в скользящей геометрии по сравнению с классическим методом “на прохождение”. Меняя угол падения вблизи критического угла полного внешнего отражения, возможно регулировать распространение пучка вглубь образца и установить профиль распределения гранул по толщине образца, а также их размер и форму.

4.2.1 Многослойные

наноструктуры



В эксперименте использовался коллимированный пучок фотонов с длиной волны $\lambda = 0.95 \text{ \AA}$ и размером $0.1 \times 0.1 \text{ мм}^2$. Интенсивность рассеяния измерялась двумерным позиционно чувствительным детектором MARCCD-133. Центральная часть детектора была защищена специальным поглотителем интенсивности прямого и зеркально отраженного пучков. Углы полного внешнего отражения фотонов от всех трех образцов лежат в пределах $\alpha_c = 0.17 - 0.18^\circ$.

На Рис. 4.6 представлены двумерные карты интенсивности малоуглового рассеяния синхротронного излучения для образцов S_1 , S_2 и S_3 , полученные при угле падения $\alpha_i = 0.36^\circ$. По положениям дифракционных пиков в пространстве импульсов $\mathbf{Q}(Q_x, Q_y, Q_z)$ можно определить характерную структурную периодичность в образцах в реальном пространстве. Период

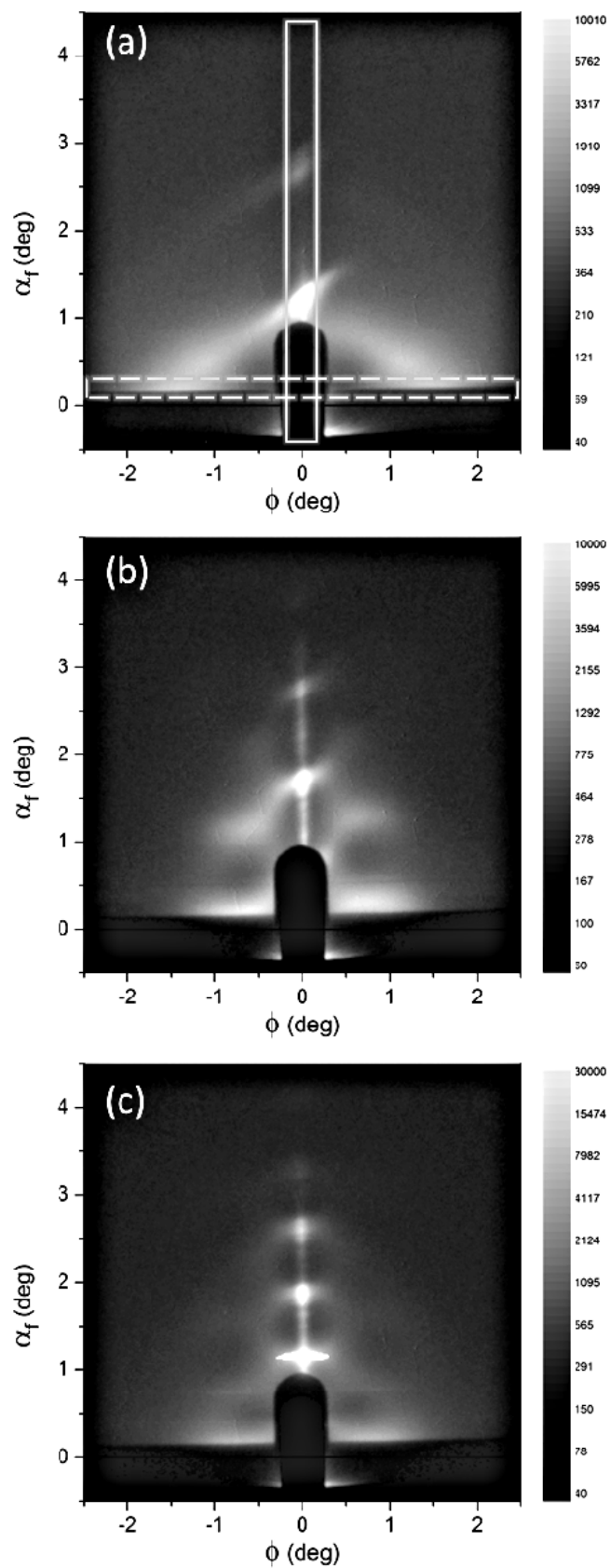


Рисунок 4.6 — Карты рассеяния GISAXS образцов $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$. Линии, вдоль которых делались срезы интенсивности на Рис. 4.8, 4.7 выделены пунктирными линиями.

Таблица 4.1 — Параметры образцов S_1 , S_2 , S_3 , определенные методами нейтронной рефлектометрии и малоуглового рассеяния синхротронного излучения в скользящей геометрии.

Образец	Нейтронная рефлектометрия			GISAXS		r_v (нм)	r_h (нм)	δ (нм)
	h_1 (нм)	h_2 (нм)	h (нм)	h (нм)	d (нм)			
S_1	3.3	0.2	3.5	3.8	4.2	1.6	1.6	0.05
S_2	5.0	0.4	5.4	5.2	7.9	2.5	3.0	0
S_3	6.2	1.3	7.5	7.6	7.0	2.8	2.8	0.3

многослойной структуры рассчитывается как $h = 2\pi/\Delta Q_z(Q_{\parallel}=0)$, где ΔQ_z – расстояние между пиками на прямой зеркального отражения $Q(Q_{\parallel} = 0, Q_z)$. Аналогичным образом можно получить значения характерных межчастичных расстояний в плоскости образца d (при рассмотрении пиков на прямой $Q(\pm Q_{\parallel}, Q_z = \text{const})$).

Характерной особенностью карт для всех образцов является наличие как минимум одного яркого Брэгговского пика, расположенного на прямой $Q(Q_{\parallel} = 0, Q_z)$, что подтверждает периодическое упорядочение металл-диэлектрического и полупроводникового слоев, обнаруженное методом нейтронной рефлектометрии. Из положений Брэгговских пиков, полученных при сечении карт при $Q_{\parallel} = 0 \pm 0.025 \text{ \AA}^{-1}$ (одинаковая для всех образцов область внутри прямоугольника, показанного сплошной линией на Рис. 4.6) и представленных на Рис. 4.8, можно определить период структуры h (Таблица 4.1). Из Рис.4.7, на котором показаны сечения карт, сделанные при $Q_z = 0.065 \pm 0.015 \text{ \AA}^{-1}$ (одинаковая для всех образцов область внутри прямоугольника, изображенного штриховой линией на рис.5а), можно установить средние расстояния между центрами металлических гранул в плоскости образцов $d = 2\pi/Q_{\parallel}$ (Таблица 4.1). Предполагается, что каждый металл-диэлектрический слой представляет собой монослой частиц. Допуская, что металлические гранулы имеют форму сфероидов с вертикальным радиусом r_v и горизонтальным радиусом r_h , в самом общем случае для сферы получаем $r_v = r_h = r$. Объем сфероида $V_s = \frac{4}{3}\pi r_v r_h^2$. Для монослоя сфероидальных частиц, упакованных в двумерную гексагональную

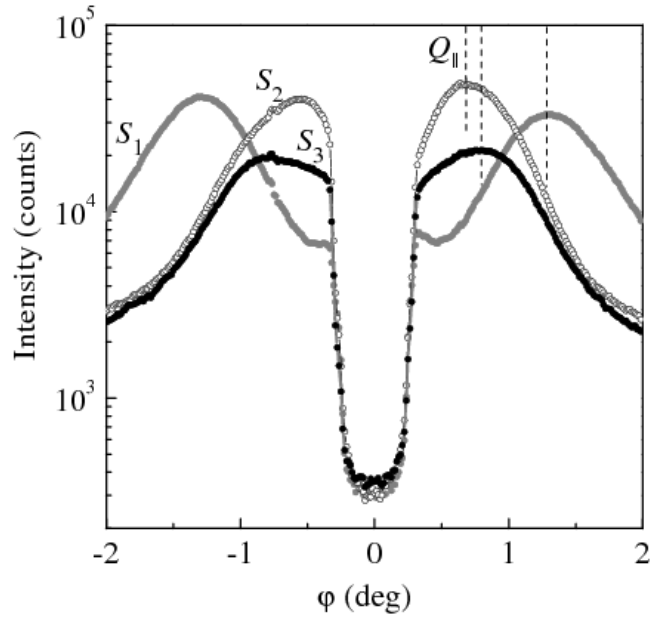


Рисунок 4.7 — Сечения двумерных карт малоуглового рассеяния синхротронного излучения вдоль угла φ при фиксированном $\alpha_f = 0.17^\circ$ для образцов S_1 , S_2 и S_3 .

решетку и внедренных в диэлектрический слой толщиной $2(r_v + \delta)$, можно записать:

$$\frac{2\pi}{3} r_v r_h^2 = \chi \frac{\sqrt{3}}{2} d^2 (r_v + \delta), \quad (4.2)$$

где d – среднее расстояние между центрами металлических гранул в плоскости образца, χ – объёмный процент содержания металла в диэлектрике. В нашем случае $2(r_v + \delta) = h_1$. Тогда получаем выражение для r_h :

$$r_h = \frac{d}{2} \sqrt{\chi \frac{3\sqrt{3}}{\pi} \left(1 + \frac{\delta}{r_v}\right)} = \frac{d}{2} \sqrt{\chi \frac{3\sqrt{3}}{2\pi} \frac{h_1}{r_v}}. \quad (4.3)$$

Варьируя r_v можно определить r_h , а также параметр δ , поскольку толщина металл-диэлектрического слоя h_1 имеет фиксированное значение, полученное из эксперимента по нейтронной рефлектометрии.

Радиусы металлических гранул для исследованных образцов представлены в Таблица 4.1. На Рис. 4.10 показаны модели структуры для трех

образцов S_1 , S_2 и S_3 , изображенные соответственно значениям, приведённым в Таблица 4.1. Из расчетов и рис.9, видно, что металлические гранулы в образцах S_1 и S_3 находятся внутри металл-диэлектрических слоев и не соприкасаются с полупроводником, хотя отдельные гранулы в образце S_1 могут контактировать ($\delta = 0.05$ нм) с разрозненными частями полупроводника (4.10а). Если предположить, что гранулы в образце S_2 имеют сферическую форму, тогда параметр δ получается отрицательным ($\delta = -0.3$ нм). В этом случае частицы проникают сквозь слой полупроводника и перколируют в вертикальном направлении (при этом кремниевый слой частично разрушен). Однако такая структура образца не объясняет его низкую намагниченность в направлении нормали к плоскости. Если же предположить, что гранулы остаются в пределах металл-диэлектрического слоя, то есть $\delta = 0$, тогда вертикальный радиус частицы $r_v = 2.5$ нм, а горизонтальный радиус $r_h = 3$ нм. Следовательно, гранулы представляют собой эллипсоиды, сплюснутые в направлении перпендикулярном плоскости слоя. Контакты металлических гранул с полупроводником ($\delta = 0$) объясняют низкое сопротивление образца S_2 . Форма частиц (большой размагничивающий фактор) и наличие неповрежденных полупроводниковых слоев определяют его низкую намагниченность в вертикальном направлении.

Следует отметить, что помимо зеркальных Брэгговских пиков на распределении интенсивности рассеяния наблюдается усиление сигнала вдоль линий, соответствующих $\alpha_f = \alpha_c$, так называемые пики Йонеды. Кроме того для образцов S_2 и S_3 обнаружены Брэгговские пики на незеркальных сечениях ($Q_{\parallel} \neq 0$), смещённые относительно пиков на линии $Q_{\parallel} = 0$, что указывает на латеральное смещение соседних металл-диэлектрических слоёв друг относительно друга на расстояние порядка размера одной гранулы. На карте рассеяния для образца S_1 кроме Брэгговского пика на линии зеркального отражения ($Q_{\parallel} = 0$) и пиков Йонеды присутствует также дифракционное кольцо, характерное для рассеяния на трёхмерной изотропной системе рассеивающих центров, то есть металлических гранул в нашем случае.

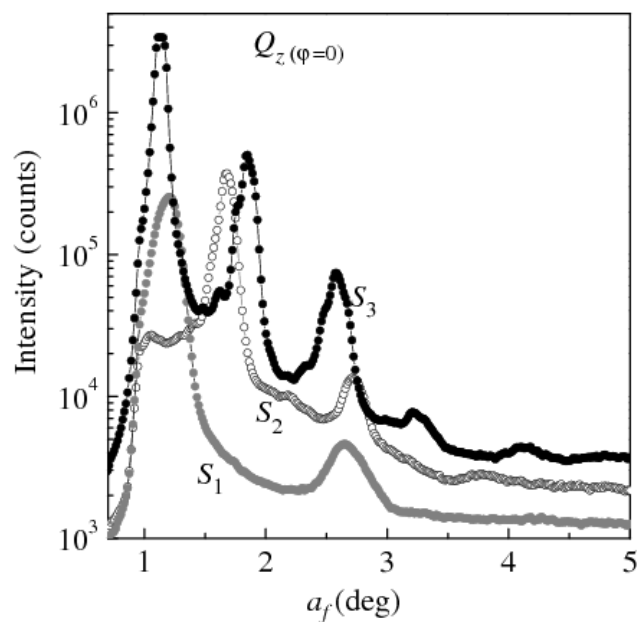


Рисунок 4.8 — Сечения двумерных карт малоуглового рассеяния синхротронного излучения вдоль угла α_f при различных фиксированных φ для образцов (a) S_1 , (b) S_2 и (c) S_3

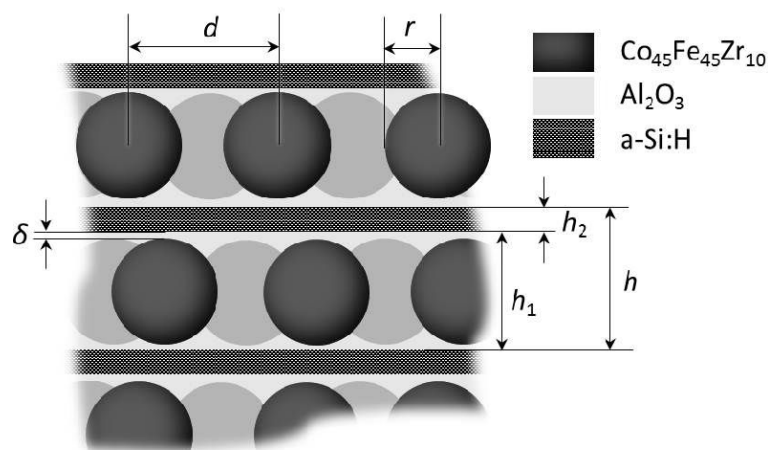


Рисунок 4.9 — Схема, иллюстрирующая структурные параметры, представленные в Таблице 4.1. Здесь δ – толщина металл-диэлектрического слоя между металлической гранулой и слоем полупроводника, $\delta = h_1/2 - r$.

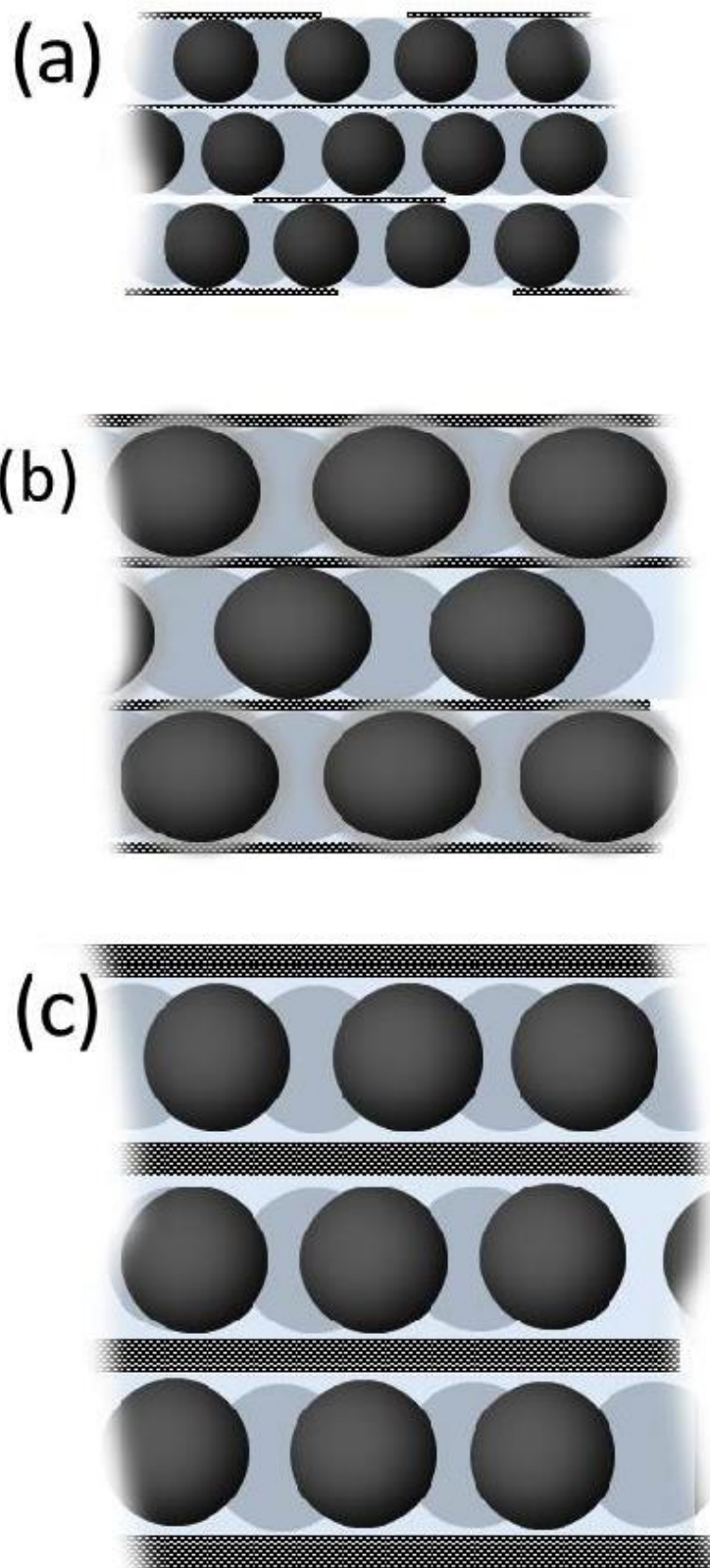


Рисунок 4.10 — Модели структуры для трех исследованных образцов, полученные в результате комбинации экспериментов по нейтронной рефлектометрии и малоугловому рассеянию синхротронного излучения в скользящей геометрии: (a) S_1 $r = 1.6$ нм, $\delta = 0.05$ нм, (b) S_2 $r_v = 2.5$ нм, $r_h = 3$ нм, $\delta = 0$ и (c) S_3 $r = 2.8$ нм, $\delta = 0.3$ нм. Части (a), (b) и (c) выполнены в относительном масштабе друг к другу.

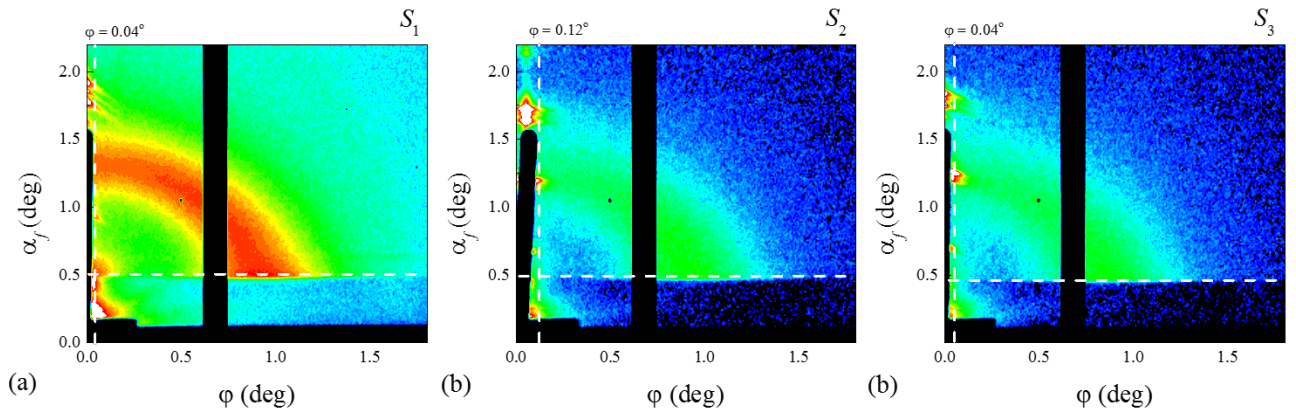


Рисунок 4.11 — Карты рассеяния GISAXS образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ (a) S_1 (b) S_2 and (c) S_3 . Линии, вдоль которых делались срезы интенсивности на Рис. 4.12, 4.13 выделены пунктирными линиями.

4.2.2 Многослойные наноструктуры $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$

Эксперимент GISAXS проводился на линии ID10 ESRF. Коллимированный пучок синхротронного излучения 10×10 мкм длиной волны $\lambda = 0.56$ Å рассеивался образцом и интенсивность рассеяния детектировалась двумерным позиционно-чувствительным детектором Pilatus 300K. Время экспозиции составляло 30 секунд на одну карту. Центральная часть детектора закрывалась свинцовым бимстопом.

Измерения GISAXS проводились на образцах S_1 , S_2 , S_3 , измеренных на SQUID магнетометре. Двумерные карты рассеяния, полученные при угле падения $\alpha_i = 0.2^\circ$ представлены на Рис. 4.11. Тёмная полоса соответствует мёртвой зоне детектора. Общей особенностью распределения интенсивности на двумерных картах рассеяния синхротронного излучения является наличие пиков Брэгговского отражения, соответствующих периодическому упорядочению МД и ПП слоёв. Для качественного описания структуры в направлении z были сделаны срезы интенсивности двумерных карт рассеяния в направлении \mathbf{Q} ($\alpha_f, \varphi \approx 0$) (Рис.4.12). 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

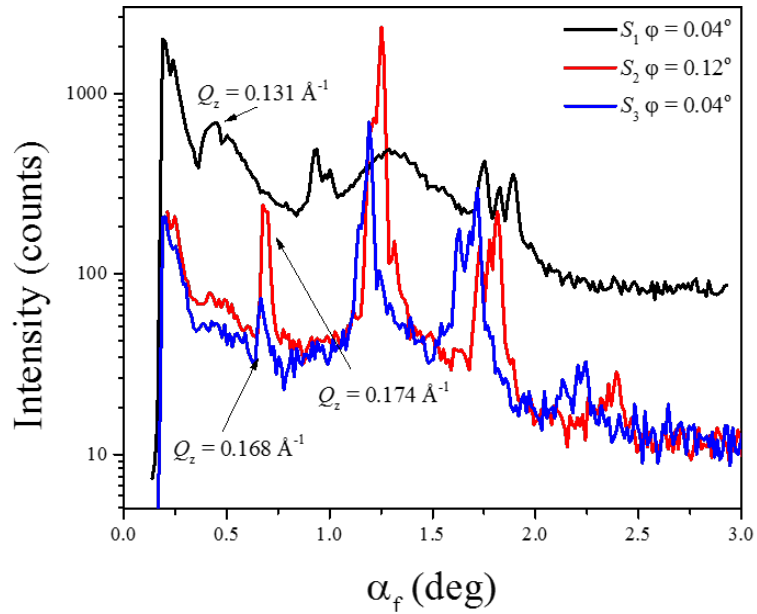


Рисунок 4.12 — Срезы карты интенсивности рассеяния GISAXS вдоль φ при постоянном α_f для образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 , S_2 и S_3 с различной толщиной углеродной прослойки.

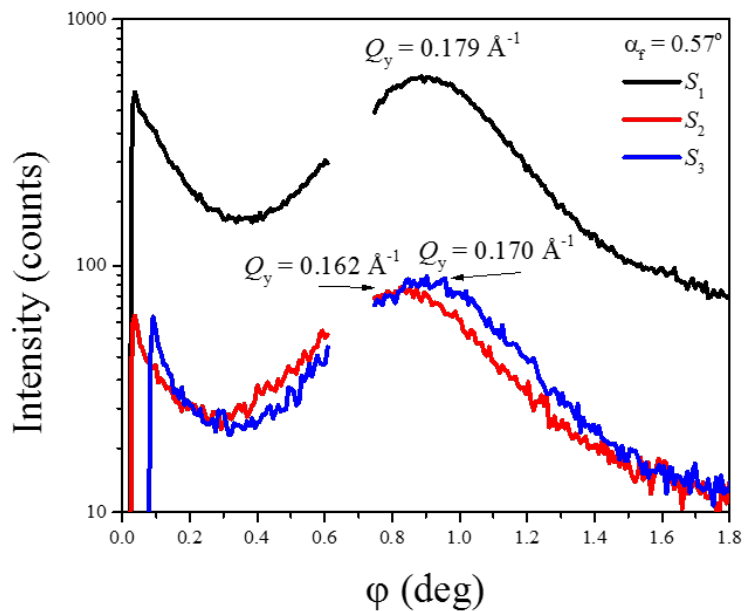


Рисунок 4.13 — Срезы карты интенсивности рассеяния GISAXS вдоль α_f при постоянном φ для образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 , S_2 и S_3 с различной толщиной углеродной прослойки.

более ярко выраженные Брэгговские пики, соответствующие периодичности многослойной структуры $\Lambda = 3.6$ нм и $\Lambda = 3.7$. Таким образом, используя номинальную толщину ПП слоя h_c , полученную из времени напыления ПП слоёв, можно получить толщину МД слоя h_{MD} : $h_{MD} = \Lambda - h_c$: (а) 4.4 нм для S_1 ; (б) 1.9 нм для S_2 и (с) 1.9 нм для S_3 .

Стоит отметить определённую особенность распределения интенсивности на картах рассеяния для образцов S_2 и S_3 : Брэгговские пики второго порядка выше по интенсивности пиков первого порядка отражения. Это указывает на значительный вклад интерфейсов в отражение от многослойной структуры МД / ПП. Как правило, более точное описание послойного распределения электронной плотности получают методом зеркальной рефлектометрии рентгеновского или нейтронного излучения, однако, в данном случае извлечь данную информацию крайне затруднительно ввиду мощного вклада незеркального рассеяния. Незеркальное рассеяние может быть связано с наличием шероховатости как отдельных структурных элементов многослойной системы, так и с коррелированной шероховатостью слоёв. Для определения шероховатости поверхности образцов были произведены исследования методом атомно-силовой микроскопии в Лаборатории Физики Диэлектриков Физико-технического Института им. Иоффе Российской Академии Наук. Атомно-силовые изображения топографии поверхности образца S_1 представлены на Рисунках 4.14, 4.15. На поверхности образца присутствуют несформировавшиеся несплошные слои металл-диэлектрика от 10 до 170 нм. Подобная картина наблюдается и для других образцов данного типа. Таким образом, крайне низкое качество поверхности образцов несёт ответственность за высокий уровень диффузных шумов в картине рассеяния рентгеновского излучения.

Средние межчастичные расстояния в плоскости плёнок были получены из сечений карт GISAXS вдоль направления φ при постоянном значении α_f (Рис. 4.13). Как нетрудно заметить, положения пиков корреляционной функции практически не меняется от образца к образцу (Рис. 4.13). Следовательно, практически не меняется и распределение частиц в плоскости образца в реальном пространстве.

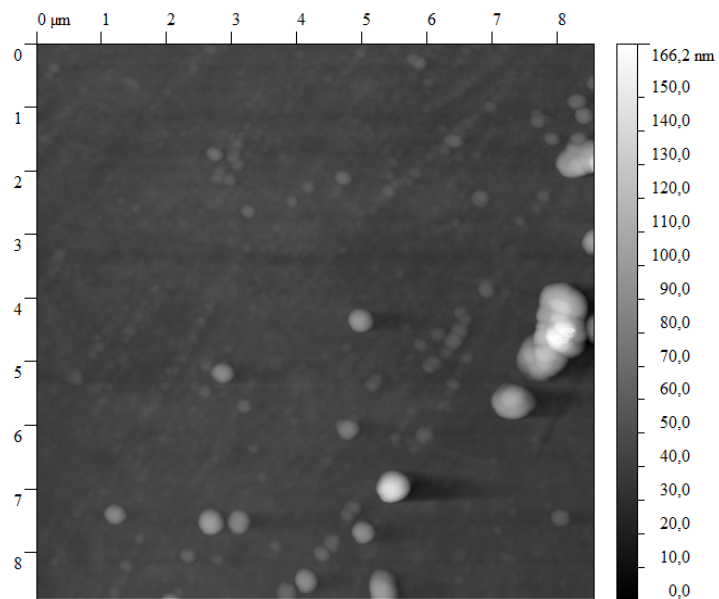


Рисунок 4.14 — Атомно-силовое изображения топографии поверхности образца S_1 размером $8.57 \times 8.75 \mu\text{m}^2$.

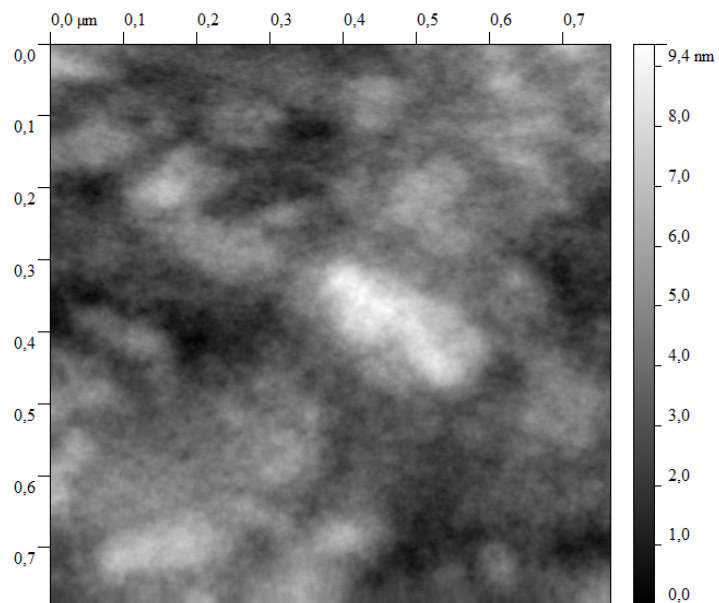


Рисунок 4.15 — Атомно-силовое изображения топографии поверхности образца S_1 размером $765 \times 780 \text{nm}^2$.

Параметры структуры образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 , S_2 и S_3 , полученные из GISAXS экспериментов представлены в Табл. 4.2.

4.3 Рефлектометрия поляризованных нейтронов

Средняя намагниченность индивидуальных металл-диэлектрических слоев образцов была исследована методом рефлектометрии поляризованных нейтронов на установке NeRo (GKSS Forschungszentrum, Гестахт, Германия). Использовался пучок поляризованных нейтронов с начальной поляризацией $P_0 = 0.95$ и длиной волны нейтронов $\lambda = 4.35 \text{ \AA}$. Интенсивность отраженного пучка регистрировалась при комнатной температуре для двух направлений поляризации падающего пучка: параллельно ($+P_0$) и антипараллельно ($-P_0$) приложенному в плоскости образца магнитному полю H , варьировавшемуся в диапазоне от 0 до 500 мТл. Углы полного внешнего отражения нейтронов от всех трех образцов лежат в пределах $\alpha_c = 0.2 - 0.24^\circ$. Перед измерениями все образцы были размагничены, т.е. к каждому образцу прикладывалось магнитное поле величиной $B = 500 \text{ мТл}$, но противоположного направления.

Для каждого образца в отсутствие внешнего магнитного поля интенсивности отраженных нейтронов $I(+P_0)$ и $I(-P_0)$ совпадают, что свидетельствует о нулевой средней намагниченности индивидуальных металл-диэлектрических слоев. Кривые отражения поляризованных нейтронов при приложении к образцам поля $B = 500 \text{ мТл}$ приведены на Рис. 4.16. Экспериментальные данные для интенсивностей $I(+P_0)$ и $I(-P_0)$ показаны символами, теоретические кривые были рассчитаны по методу Парратта и представлены сплошными линиями: черной для $I(+P_0)$ и серой для $I(-P_0)$. Для образцов S_1 и S_3 наблюдается расщепление кривых $I(+P_0)$ и $I(-P_0)$, свидетельствующее о появлении ненулевого параллельного полю среднего магнитного момента металл-диэлектрических слоев (Рис. 4.16а,с). Металл-диэлектрические слои образца S_2 , напротив, практически не намагничиваются в приложенном поле, что можно видеть в почти полном отсутствии расщепления кривых $I(+P_0)$ и $I(-P_0)$ на (Рис. 4.16b). Кроме того, из рис.2 видно, что для образца S_1 (Рис. 4.16а) расщепление кривых $I(+P_0)$ и $I(-P_0)$ начинается с области малых углов

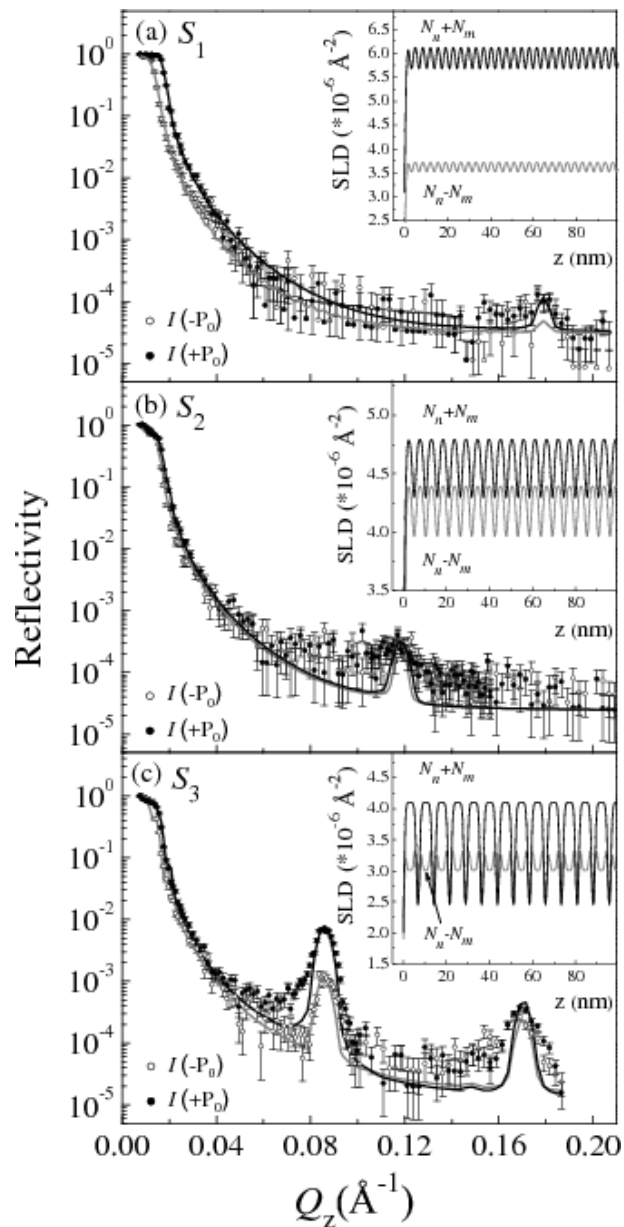


Рисунок 4.16 — Кривые отражения поляризованных нейтронов для двух направлений поляризации падающего пучка ($+P_0$) и ($-P_0$) при $B = 500$ мТл для образцов: (a) S_1 , (b) S_2 и (c) S_3 . Экспериментальные данные показаны символами, теоретические кривые представлены сплошными линиями: черной для $I(-P_0)$ и серой для $I(+P_0)$. На вставках изображены соответствующие профили плотности длины рассеяния для нескольких периодов структуры: сумма ядерного и магнитного профиля (черная линия) и их разность (серая линия).

(полного внешнего отражения). В то время как для образца S_3 (Рис. 4.16с), напротив, расщепление происходит в области первого рефлекса ($Q = 0.09 \text{ \AA}^{-1}$), соответствующего первому структурному брэгговскому пику, причем в области второго пика ($Q = 0.17 \text{ \AA}^{-1}$) и в области малых углов расщепление не зарегистрировано. Обнаруженное поведение интенсивности уже наблюдалось нами в многослойных структурах, подобных исследованной здесь, и связано с неоднородным распределением средней намагниченности в пределах индивидуального металл-диэлектрического слоя, а именно наличием в каждом металл-диэлектрическом слое магнито-активной центральной части и магнитно-мертвых частей на интерфейсах с полупроводником [39].

Экспериментальные кривые для образцов S_1 и S_2 достаточно хорошо аппроксимировались моделями, в каждой из которых период структуры составляют два слоя: металл-диэлектрический и полупроводниковый. Для образца S_3 каждый металл-диэлектрический слой дополнительно разбивался на магнитно-активный центральный подслой и два магнитно-мертвых подслоя на интерфейсах с a-Si:H. В Таблице 4.1 представлены толщины металл-диэлектрического (h_1) и полупроводникового (h_2) слоев, а также толщины бислоев (периоды структур) (h), определенные из процедуры подгонки по методу наименьших квадратов. Толщины слоев определены с точностью до 0.1 нм. Отклонение этих параметров на 0.1 нм от приведенных в Таблице 4.1 значений заметно ухудшало ошибку подгонки χ^2 . Видно, что экспериментально определенные толщины полупроводникового слоя оказались несколько отличными от заявленных номинально (0.2 нм вместо 0.6 нм для образца S_1 ; 0.4 нм вместо 1.4 нм для S_2 ; 1.3 нм вместо 2.3 нм для S_3), а толщина металл-диэлектрического слоя не является одинаковой для трех образцов S_1 , S_2 и S_3 . Из Рис. 4.16b,c также видно, что экспериментальные пики, соответствующие периоду многослойной структуры, более широкие по сравнению с теоретическими. Мы полагаем, что это уширение связано с небольшой раскоррелированностью толщины бислоев в разных областях образцов.

Профили плотности длины рассеяния, также полученные в результате аппроксимации экспериментальных данных, для каждого образца представлены на соответствующих вставках к 4.16 для нескольких периодов

структуры. Профиль для кривой $I(+P_0)$ соответствует магнитному профилю плотности длины рассеяния N_m , добавленному к ядерному N_n : $(N_n + N_m)$ – черная линия. В то время как профиль для кривой $I(-P_0)$, соответствующий разнице $(N_n - N_m)$, показан серой линией. Для образца S_3 профиль плотности длины рассеяния, изображенный на вставке к 4.1бс, соответствует следующей структуре одного металл-диэлектрического слоя: магнитно-активная центральная часть толщиной примерно 4.4 нм окружена двумя магнитно-мертвыми частями (толщиной примерно 0.9 нм) на интерфейсах с полупроводником.

Величина N_m , определенная для каждого образца в результате подгонки, прямо пропорциональна средней намагниченности индивидуального металл-диэлектрического слоя (Рис. 4.2). Из Рис. 4.2 видно, что образец S_2 слабее других намагничивается в приложенном поле.

4.4 Обсуждение результатов

4.4.1 Многослойные наноструктуры металл-диэлектрик / аморфный кремний

Мы заключаем, что в образце S_1 из-за слишком малого количества кремния (0.2 нм) еще не успевает сформироваться непрерывный полупроводниковый слой. Поэтому образец намагничивается не как слоистая структура, а как толстая пленка толщиной, равной периоду структуры умноженному на число бислоев (в нашем случае их 36). Такое предположение объясняет легкое намагничивание образца в очень малых полях ($B = 30$ мТл), в том числе и перпендикулярно плоскости структуры (Рис. 4.1а). Образец S_3 характеризуется наличием четких полупроводниковых слоев толщиной 1.3 нм, поэтому он намагничивается как слоистая структура, причем намагниченность сосредоточена в центре каждого металл-диэлектрического слоя. Из Рис. 4.1 видно, что этот образец значительно хуже намагничивается в перпендикулярной плоскости, по сравнению с латеральной, чему мешают сформировавшиеся слои a-Si:H.

Дополнительные исследования транспортных свойств образцов показали, что на зависимости сопротивления, измеренного в плоскости образцов, от толщины кремниевого слоя наблюдается минимум, соответствующий наименее намагниченному образцу S_2 с толщиной полупроводникового слоя 0.4 нм (рис.3). Очевидно, что сопротивление и магнитное упорядочение в образцах скоррелированы. В работе установлена морфология многослойных гетерогенных структур металл-диэлектрик/полупроводник $[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{35}(Al_2O_3)_{65}/a-Si:H]_{36}$ с различной толщиной полупроводника. Установлено, что образец S_2 обладает меньшей намагниченностью насыщения и большей проводимостью по сравнению с образцами S_1 и S_3 . В магнитном смысле образец S_1 представляет собой трёхмерную сетку взаимодействующих диполей, что объясняет его большую магнитную восприимчивость. В образце S_3 благодаря формированию непрерывного слоя кремния взаимодействие между частицами возможно лишь внутри одного металл-диэлектрического слоя, поэтому восприимчивость этого образца ниже, чем для S_1 . Кроме того наличие в индивидуальном металл-диэлектрическом слое диэлектрического зазора между металлическими гранулами и слоем полупроводника ($\delta = 0.3$ нм) объясняет возникновение магнитно-мертвых подслоев на интерфейсах с полупроводником, наблюдаемое нами в экспериментах по рефлектометрии поляризованных нейтронов. Образец S_2 характеризуется наибольшим расстоянием между металлическими гранулами в индивидуальном металл-диэлектрическом слое (d), что объясняет его наименьшую латеральную восприимчивость и намагниченность насыщения. Эллиптическая форма частиц (большой размагничивающий фактор) и наличие сформировавшихся полупроводниковых слоев определяют низкую намагниченность в вертикальном направлении, а контакт металлических гранул с полупроводником ($\delta = 0$) объясняет низкое сопротивление этого образца. Таким образом, можно заключить, что морфология гетерогенной слоистой структуры $[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{35}(Al_2O_3)_{65}/a-Si:H]_{36}$ является фактором, определяющим ее магнитные и проводящие свойства, а комбинация методов магнитооптического эффекта Керра, рефлектометрии поляризованных нейтронов и малоуглового рассеяния синхротронного

Таблица 4.2 – Структурные параметры образцов S_1, S_2, S_3 , определённые из GISAXS данных. Толщина слоя углерода h_c определена из времени напыления.

Образец	Λ (нм)	h_c (нм)	h_{MI} (нм)	l (нм)	r_h (нм)	V , (нм ³)
S_1	4.8	0.4	4.4	3.5	1.65	25.4
S_2	3.6	1.7	1.9	3.9	1.85	13.6
S_3	3.7	1.8	1.9	3.7	1.75	12.2

излучения в скользящей геометрии – эффективным инструментом для полного исследования многослойных магнитных наноструктур.

4.4.2 Многослойные наноструктуры металл-диэлектрик / углерод

На основе экспериментов по GISAXS можно реконструировать трёхмерное расположение наночастиц аморфного магнитного сплава в реальном пространстве. По аналогии с параграфом 3.4.1 можно рассчитать размеры эллипсоидных наночастиц в вертикальном и горизонтальном направлениях. Полученные результаты представлены в Табл. 4.2.

Как можно видеть из Табл. 4.2, среднее латеральное расстояние между частицами L , и, следовательно (из-за одинаковой объёмной доли металла), в плоскости размер наночастиц r_h 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 магнитометрии также демонстрируют существенные изменения в магнитных свойствах многослойных систем. Температура блокировки для невзаимодействующих суперпарамагнитных наночастиц задаётся формулой [87]:

$$T_b = \frac{KV}{25k_B}, \quad (4.4)$$

где K – константа анизотропии, V – объём наночастицы, k_B – постоянная Больцмана. Данную формулу некорректно использовать напрямую для

расчёта температуры блокировки, так как к магнитокристаллической анизотропии аморфного сплава добавляется анизотропия формы наночастиц. Однако, 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 методом SQUID 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. Вклад в разницу температур блокировки из-за различной анизотропии формы наночастиц в образцах S_1 , S_2 и S_3 незначителен по сравнению с вкладом разницы объёмов наночастиц.

4.4.3 Обобщение результатов

Таким образом, на основе полученной методом GISAXS информации, можно сделать заключение о том, что, как и в случае многослойных неоднородных наноструктур $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$, морфология слоёв полупроводника (углерода и аморфного кремния) определяет структуру и магнитные свойства слоёв наночастиц. В образцах $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}]/[\text{C}]_{47}$, изменяя толщину слоя С 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 полупроводниковой прослойки.

Морфология металл-диэлектрических слоёв зависит от физико-химических процессов роста на различных поверхностях в зависимости от таких параметров, как мобильность 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.

Более детальное исследование отдельных слоёв структуры методами рассеяния синхротронного и нейтронного излучений затруднено в связи с низким качеством поверхности образцов и, соответственно, сильным диффузным рассеянием излучения. Также стоит отметить, что при создании образцов не удалось избежать образования химической деградации магнитных свойств на интерфейсах металл-диэлектрик / полупроводник.

Заключение

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 наноэлектронике 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 рисунков

1.1	Зависимость намагниченности ансамбля суперпарамагнитных частиц из аморфного магнитномягкого сплава $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ от внешнего магнитного поля (символы), описываемая законом Ланжевена (Ур. 1.5) (сплошная линия).	14
1.2	Изображение двойной потенциальной ямы, определяющей зависимость энергии от ориентации магнитного момента в пространстве.	15
1.3	Зависимость коэрцитивной силы H_c от размера наночастицы. .	17
1.4	ПЭМ изображения образцов (а) $\text{Au-Fe}_3\text{O}_4$ димеров, (б) $\text{Au-Fe}_3\text{O}_4$ кластеров, (с) димеров после травления, (д) эпитаксиальных димеров $\text{Au-Fe}_3\text{O}_4$ с высоким разрешением [7].	18
1.5	Циклы Zero-field-cooling (синие квадраты) и field-cooling в поле 1 Т (красные кружки) измерений намагниченности $M(H)$ при температуре 2 К для $\text{Au-Fe}_3\text{O}_4$ димеров. На вставке изображена полная петля гистерезиса [7].	19
1.6	ВАХ ГП $\text{SiO}_2(\text{Co } 71 \text{ ат.}\%)$ в GaAs при приложенных в плоскости плёнки полях 1) $B = 0$ Т 2) $B = 0.5$ Т 3) $B = 1$ Т 4) $B = 1.5$ Т .	21
1.7	Зависимость коэффициента магнитосопротивления MR ГП $\text{SiO}_2(\text{Co } 38 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ от магнитного поля B при различных напряжениях 1) $U = 60$ В 2) $U = 70$ В 3) $U = 80$ В 4) $U = 90$ В	22
1.8	Зависимость коэффициента MR ГП $\text{SiO}_2(\text{Co } 71 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ от температуры при различных напряжениях 1) $U = 40$ В 2) $U = 50$ В 3) $U = 60$ В 4) $U = 70$ В	23

1.9	(а) XANES спектры на краю поглощения железа Fe $L_{2,3}$ композита $(\text{CoFeZr})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и эталонные спектры Fe, FeO, Fe ₂ O ₃ , и Fe ₃ O ₄ из статьи [38]; (б) XANES спектры на краю поглощения кобальта Co $L_{2,3}$ композита и эталонные спектры XANES Co и CoO из статьи [38]. Спектры композита получены в работе [35].	26
1.10	Зависимость интегральной спиновой асимметрии отражения поляризованных нейтронов от образца $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(1-x)} / \text{a-Si}]$ от величины магнитного поля [39].	27
1.11	Кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов от образца $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{47}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{53} / \text{a-Si}]_{23}$. На вставке изображён соответствующий профиль плотности длины рассеяния нейтронов [39].	28
1.12	Зависимость удельного электрического сопротивления ρ (а) и действительной μ' и мнимой μ'' частей комплексной магнитной проницаемости (на частоте 50 МГц) (б) от толщины прослойки С на $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{V}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66} / \text{C}]$ [41].	31
1.13	Универсальная ионно-лучевая установка: 1 – вакуумная камера, 2 – источник ионов, 3 – источник ионов с открытым торцом, 4 – мишень, 5 – источник ионов, 6 – держатель подложек [42]. . .	32
2.1	Излучение релятивистского электрона во внешнем магнитном поле. В плоскости, в которой расположены векторы скорости электрона v и напряженности электрического поля E , излучение линейно поляризовано.	35
2.2	Геометрия эксперимента GISAXS	38
2.3	Различные варианты сценария процесса рассеяния СИ: а) $q_z = k_{fz} - k_{iz}$ б) $q_z = k_{iz} + k_{fz}$ в) $q_z = -k_{iz} - k_{fz}$ г) $q_z = k_{iz} - k_{fz}$. . .	40
2.4	Схема рассеяния при GISAXS эксперименте.	41
2.5	Экспериментальные карты рассеяния GISAXS полученные в процессе роста нанокластеров Pt наложке MgO [52].	43

2.6	Карты GISAXS от образцов (а) гранулированной плёнки Fe 35% Al ₂ O ₃ и (b) гранулированной многослойной структуры [Co(0.7 нм)/Al ₂ O ₃ (3 нм)] ₃₀ из статьи [53].	44
2.7	Карты GISAXS рассеяния от образцов Ag _{33%} -C (210 нм) измеренные при различных углах падения (а) $\alpha_i = \alpha_c$, (b) $\alpha_i = \alpha_c + 0.05^\circ$, (c) $\alpha_i = \alpha_c + 0.1^\circ$ из статьи [54].	46
2.8	Геометрия эксперимента по рефлектометрии поляризованных нейтронов.	49
2.9	Симуляция нейтронной рефлектометрии от подложки из кремния (чёрная линия), плёнки Fe толщиной 20 нм (синяя линия) и 20.6 нм (красная линия) на Si подложке.	51
2.10	(а) Экспериментальная двумерная карта рассеяния нейтронов от сверхрешётки Fe / Cr (001). (b) Теоретическая модель. (c) Карта рассеяния, аналогичная (а) измеренная с анализом поляризации отражённых нейтронов. Нижний правый рисунок: теоретическая модель, описывающая магнитное упорядочение слоёв железа в сверхрешётке.	54
2.11	(а) Данные (символы) и модели (сплошные линии) измеренные от образца при температуре 10 К в состоянии магнитного насыщения. (b) Спиновая асимметрия, иллюстрирующая чисто магнитный вклад в отражение. (c) Профиль плотности длины рассеяния, рассчитанный из подгоночных коэффициентов. . . .	56

3.1	Двумерные карты GISAXS при $S(\alpha_i = 0.22^\circ, \alpha_f, \varphi)$ для образцов $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ толщиной ГП (а) 90 нм и (б) 900 нм. Точечной линией выделена часть дифракционного кольца, возникающего из-за рассеяния на трехмерной структуре перколирующих частиц кобальта в основном слое ГП. Стрелками MC показано рассеяние на монослое частиц кобальта находящихся в интерфейсном слое. Стрелки MR показывают диффузное рассеяние от поверхности образцов в направлении зеркального отражения. Пунктирные линии C_1 , C_2 и C_3 соответствуют положениям срезов на распределении интенсивности, представленных на Рис. 3.2 в виде одномерных кривых. Серые прямоугольники закрывают область детектора, в реальном эксперименте защищенную поглотителем от прямого и зеркального пучков высокой интенсивности.	59
3.2	Угловые зависимости интенсивности GISAXS в сечениях двумерного распределения S для образцов $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \text{ ат.}\%)/\text{GaAs}$ толщиной ГП 90 нм и 900 нм.	60
3.3	Модель структуры исследованных ГП $\text{SiO}_2(\text{Co})$ на подложке GaAs, полученная на основе экспериментов GISAXS.	62
3.4	(а) Двумерная карта GISAXS для образца $\text{SiO}_2(\text{Co } 54 \text{ \% ат.}) / \text{Si}$. Пунктирной линией обозначена линия сечения вдоль угла $\alpha_f = 0.20^\circ$. (б) Сечение интенсивности рассеяния вдоль угла $\alpha_f = 0.20^\circ$	64
3.5	Зависимость намагниченности ГП $\text{Au}/\text{SiO}_2(75 \text{ ат.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ с толщиной плёнки 900 Å и $\text{SiO}_2(54 \text{ ат.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ с толщиной плёнки 9000 Å от магнитного поля. На вставке выделены дополнительные петли вблизи намагниченности насыщения. . .	65
3.6	FC/ZFC циклы измерения температурной зависимости намагниченности для образцов а) $\text{Au}/\text{SiO}_2(75 \text{ ат.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ 900 Å б) $\text{SiO}_2(54 \text{ ат.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ 9000 Å в магнитном поле 10 мТ.	66
3.7	Первая производная функции ZFC температурной зависимости намагниченности для образцов а) $\text{Au}/\text{SiO}_2(75 \text{ ат.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ 900 Å б) $\text{SiO}_2(54 \text{ ат.}\% \text{ Co})/\text{GaAs}$ 9000 Å в поле 10 мТ.	67

3.8	Зависимость температуры блокировки от величины приложенного магнитного поля H для образцов а) Au/SiO ₂ (75 ат.% Co)/GaAs 900 Å б) SiO ₂ (54 ат.% Co)/GaAs 9000 Å	68
3.9	Кривая намагниченности образца SiO ₂ (54 ат.% Co) / Si при комнатной температуре. На вставке выделена область кривой в диапазоне полей $B = 1000..5000$ мТ.	69
3.10	Зависимость намагниченности образца SiO ₂ (54 ат.% Co) / Si от температуры в циклах FC / ZFC.	69
3.11	Зависимость первой производной намагниченности образца SiO ₂ (54 ат.% Co) / Si от температуры в цикле ZFC.	70
3.12	Схема рефлектометра поляризованных нейтронов PNR.	71
3.13	Экспериментальные (символы) и рассчитанные (сплошные линии) кривые рефлектометрии для образца Au/SiO ₂ (75 ат.% Co)/GaAs в полях $H = 0$ и $H = 240$ мТ при температурах а) $T = 300$ К и б) $T = 120$ К. В случае поля все кривые $H = 240$ мТ помножены на 10 для удобства представления данных.	73
3.14	Профиль плотности длины рассеяния ρ^+ (сплошная линия) и ρ^- (пунктирная линия) образца Au/SiO ₂ (75 ат.% Co)/GaAs в поле $H = 0.24$ Т при $T = 300$ К.	74
3.15	Зависимость намагниченности от приложенного поля, рассчитанная согласно формуле (3.2) для слоёв GF2 и GF3 образца Au/SiO ₂ (75 ат.% Co)/GaAs. Белые квадраты соответствуют данным для GF2 при 120 К, чёрные квадраты – GF2 при 300 К, белые круги – GF3 при 120 К, чёрные круги – GF3 при 300 К.	76
3.16	Экспериментальные (символы) и рассчитанные (сплошные линии) рефлектометрические кривые для образца SiO ₂ (54 ат.% Co) / Si в полях $B = 0$ и $B = 240$ мТ при комнатной температуре. В случае поля все кривые $B = 240$ мТ помножены на 100 для удобства восприятия.	78
3.17	Профиль плотности длины рассеяния ρ^+ (сплошная линия) и ρ^- (пунктирная линия) образца SiO ₂ (54 ат.% Co) / Si в полях $B = 0$ и $B = 240$ мТ при комнатной температуре.	79

3.18	Зависимость намагниченности от приложенного поля, рассчитанная согласно формуле (3.2) для слоёв Layer 2 и Layer 3 образца $\text{SiO}_2(\text{Co})/\text{Si}$. Чёрные кружки соответствуют данным для Layer 2, белые кружки – Layer 3 при комнатной температуре.	79
4.1	Измерение намагниченности методом магнитооптического эффекта Керра в плоскости (l) и перпендикулярно плоскости (n) для образцов (a) S_1 , (b) S_2 и (c) S_3	85
4.2	На левой оси приведено сопротивление многослойных наноструктур $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$, измеренное в плоскости плёнок. Открытыми кружками показано сопротивление всех образцов серии, заполненными кружками – трёх исследованных образцов. На правой шкале (заполненные квадратики) приведена магнитная плотность длины рассеяния N_m для трех образцов S_1 , S_2 и S_3 при $B = 700$ мТл	86
4.3	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 M от приложенного поля H при комнатной температуре.	87
4.4	Температурная зависимость намагниченности образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 , S_2 , S_3 , измеренная в поле $H = 100$ Э.	88
4.5	(a) Температурная удельного сопротивления намагниченности образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ в зависимости от толщины слоя C, измеренная четырёхконтактным методом при различных температурах [41]. (b) Температурная зависимость сопротивления образца $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 . На вставке изображена область кроссовера между типами проводимости Шкловского-Эфроса и Мотта. (c) Температурная зависимость сопротивления образца $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_3	89

4.6	Карты рассеяния GISAXS образцов $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{35}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{65}/\text{a-Si:H}]_{36}$. Линии, вдоль которых делались срезы интенсивности на Рис. 4.8, 4.7 выделены пунктирными линиями.	91
4.7	Сечения двумерных карт малоуглового рассеяния синхротронного излучения вдоль угла φ при фиксированном $\alpha_f = 0.17^\circ$ для образцов S_1 , S_2 и S_3	93
4.8	Сечения двумерных карт малоуглового рассеяния синхротронного излучения вдоль угла α_f при различных фиксированных φ для образцов (a) S_1 , (b) S_2 и (c) S_3	95
4.9	Схема, иллюстрирующая структурные параметры, представленные в Таблице 4.1. Здесь δ – толщина металл-диэлектрического слоя между металлической гранулой и слоем полупроводника, $\delta = h_1/2 - r$	95
4.10	Модели структуры для трех исследованных образцов, полученные в результате комбинации экспериментов по нейтронной рефлектометрии и малоугловому рассеянию синхротронного излучения в скользящей геометрии: (a) S_1 $r = 1.6$ нм, $\delta = 0.05$ нм, (b) S_2 $r_v = 2.5$ нм, $r_h = 3$ нм, $\delta = 0$ и (c) S_3 $r = 2.8$ нм, $\delta = 0.3$ нм. Части (a), (b) и (c) выполнены в относительном масштабе друг к другу.	96
4.11	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 and (c) S_3 . Линии, вдоль которых делались срезы интенсивности на Рис. 4.12, 4.13 выделены пунктирными линиями.	97
4.12	Срезы карты интенсивности рассеяния GISAXS вдоль φ при постоянном α_f для образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 , S_2 и S_3 с различной толщиной углеродной прослойки.	98
4.13	Срезы карты интенсивности рассеяния GISAXS вдоль α_f при постоянном φ для образцов $[(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{34}(\text{SiO}_2)_{66}/\text{C}]_{47}$ S_1 , S_2 и S_3 с различной толщиной углеродной прослойки.	98
4.14	Атомно-силовое изображения топографии поверхности образца S_1 размером $8.57 \times 8.75 \mu\text{m}^2$	100

- 4.15 Атомно-силовое изображения топографии поверхности образца S_1 размером $765 \times 780 \text{ nm}^2$ 100
- 4.16 Кривые отражения поляризованных нейтронов для двух направлений поляризации падающего пучка $(+P_0)$ и $(-P_0)$ при $B = 500 \text{ мТл}$ для образцов: (а) S_1 , (b) S_2 и (с) S_3 . Экспериментальные данные показаны символами, теоретические кривые представлены сплошными линиями: черной для $I(-P_0)$ и серой для $I(+P_0)$. На вставках изображены соответствующие профили плотности длины рассеяния для нескольких периодов структуры: сумма ядерного и магнитного профиля (черная линия) и их разность (серая линия). 102

Список таблиц

3.1	Параметры модели плёнки Au/SiO ₂ (75 at.% Co)/GaAs	73
4.1	Параметры образцов S_1 , S_2 , S_3 , определенные методами нейтронной рефлектометрии и малоуглового рассеяния синхротронного излучения в скользящей геометрии.	92
4.2	Структурные параметры образцов S_1 , S_2 , S_3 , определённые из GISAXS данных. Толщина слоя углерода h_c определена из времени напыления.	106

Литература

- 1 Valenzuela Raul. Magnetic Ceramics. — Cambridge University Press, 1994.
- 2 Л.Д. Ландау. Квантовая механика / Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теоретическая физика : в десяти томах — Наука, 1963.
- 3 С.П. Губин. Актуальные проблемы структурной физики конденсированных сред. Физико-химические проблемы наночастиц. Учебное пособие / С.П. Губин, А.С. Илюшин. — Физический факультет МГУ Москва, 2011. — С. 85.
- 4 L. Néel. The Selected Works of Louis Neel / L. Néel, N. Kurti. — Gordon & Breach Publishing Group, 1984.
- 5 E. C. Stoner. A Mechanism of Magnetic Hysteresis in Heterogeneous Alloys / E. C. Stoner, E. P. Wohlfarth // Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences. — 1948. — Vol. 240, no. 826. — Pp. 599–642.
- 6 Wikipedia. Суперпарамагнетизм — Wikipedia, The Free Encyclopedia. — 2004.
- 7 Exchange bias effect in Au-Fe₃O₄ nanocomposites / Sayan Chandra, N.A. Frey Huls, M.H. Phan [и др.] // Nanotechnology. — 2014. — Vol. 25, no. 5. — P. 055702.
- 8 Effect of dipolar interaction observed in iron-based nanoparticles / J.M. Vargas, W.C. Nunes, L.M. Socolovsky [и др.] // Phys. Rev. B. — 2005. — Nov. — Vol. 72. — P. 184428.

- 9 Pankaj Poddar. Dipolar interactions in two- and three-dimensional magnetic nanoparticle arrays / Pankaj Poddar, Tamar Telem-Shafir, Tcipi Fried, Gil Markovich // *Phys. Rev. B.* — 2002. — Aug. — Vol. 66. — P. 060403.
- 10 Layered magnetic structures: evidence for antiferromagnetic coupling of Fe layers across Cr interlayers / Peter Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang [и др.] // *Physical Review Letters.* — 1986. — Vol. 57, no. 19. — P. 2442.
- 11 Binasch G. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange / G. Binasch, Peter Grünberg, F. Saurenbach, W. Zinn // *Physical review B.* — 1989. — Vol. 39, no. 7. — P. 4828.
- 12 Mott Neville F. The scattering of fast electrons by atomic nuclei // *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character.* — 1929. — Vol. 124, no. 794. — Pp. 425–442.
- 13 M.I. D'yakonov. Possibility of orienting electron spins with current / M.I. D'yakonov, V.I. Perel // *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters.* — 1971. — Vol. 13. — P. 467.
- 14 Hirsch J.E. Spin hall effect // *Physical Review Letters.* — 1999. — Vol. 83, no. 9. — P. 1834.
- 15 Julliere Michel. Tunneling between ferromagnetic films // *Physics letters A.* — 1975. — Vol. 54, no. 3. — Pp. 225–226.
- 16 Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers / Stuart S.P. Parkin, Christian Kaiser, Alex Panchula [и др.] // *Nature materials.* — 2004. — Vol. 3, no. 12. — Pp. 862–867.
- 17 Unravelling the role of the interface for spin injection into organic semiconductors / Clément Barraud, Pierre Seneor, Richard Mattana [и др.] // *Nature Physics.* — 2010. — Vol. 6, no. 8. — Pp. 615–620.
- 18 Room-temperature tunnel magnetoresistance and spin-polarized tunneling through an organic semiconductor barrier / T.S. Santos, J.S. Lee, P. Migdal [и др.] // *Physical review letters.* — 2007. — Vol. 98, no. 1. — P. 016601.

- 19 Structural coherence and layer perfection in Fe/MgO multilayers / Hossein Raanaei, Hans Lidbaum, Andreas Liebig [и др.] // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2008. — Vol. 20, no. 5. — P. 055212.
- 20 Л.В. Луцев. Гигантское инжекционное магнитосопротивление в гетероструктурах арсенид галлия/гранулированная пленка с наноразмерными включениями кобальта / Л.В. Луцев, А.И. Стогний, НН Новицкий // *Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики*. — 2005. — Vol. 81, no. 10. — Pp. 636–641.
- 21 L.V. Lutsev. Giant magnetoresistance in semiconductor/granular film heterostructures with cobalt nanoparticles / L.V. Lutsev, A.I. Stognij, N.N. Novitskii // *Physical Review B*. — 2009. — Vol. 80, no. 18. — P. 184423.
- 22 Giant magnetoresistance in electro-deposited Co-Cu granular film / Shihui Ge, Haohua Li, Chao Li [и др.] // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2000. — Vol. 12, no. 27. — P. 5905.
- 23 A.B. Pakhomov. Giant Hall effect in percolating ferromagnetic granular metal-insulator films / A.B. Pakhomov, X. Yan, B. Zhao // *Applied Physics Letters*. — 1995. — Vol. 67, no. 23. — Pp. 3497–3499.
- 24 B. Zhao. Anisotropic magnetoresistance and planar Hall effect in magnetic metal-insulator composite films / B. Zhao, X. Yan, A.B. Pakhomov // *Journal of Applied Physics*. — 1997. — Apr. — Vol. 81, no. 8. — Pp. 5527–5529.
- 25 Room temperature tunneling magnetoresistance of electron beam deposited $(\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ cermet granular films / Andriy Ya. Vovk, Jian-Qing Wang, Weilie Zhou [и др.] // *Journal of Applied Physics*. — 2002. — Jun. — Vol. 91, no. 12. — Pp. 10017–10021.
- 26 Chuncheng Wan. Quantum interference and the giant Hall effect in percolating systems / Chuncheng Wan, Ping Sheng // *Phys. Rev. B*. — 2002. — Aug. — Vol. 66. — P. 075309.
- 27 Hui Liu. Giant Hall effect in metal/insulator composite films / Hui Liu, Rong Kun Zheng, Ge Hui Wen, Xi Xiang Zhang // *Vacuum*. — 2004. —

Vol. 73, no. 3–4. — Pp. 603 – 610. — The 4th International Symposium on Applied Plasma Science.

- 28 Infrared reflectance and magnetorefractive effects in metal-insulator CoFe-Al₂O₃ granular films / D. Bozec, V.G. Kravets, J. A D Matthew [и др.] // Journal of Applied Physics. — 2002. — May. — Vol. 91, no. 10. — Pp. 8795–8797.
- 29 Jiu Rong Liu. Magnetic and electromagnetic wave absorption properties of alpha-Fe/Z-type Ba-ferrite nanocomposites / Jiu Rong Liu, Masahiro Itoh, Ken-ichi Machida // Applied physics letters. — 2006. — Vol. 88, no. 6. — P. 2503.
- 30 Nanocomposite Co/SiO₂ soft magnetic materials / Y.D. Zhan, S.H. Wang, D.T. Xiao [и др.] // Magnetism, IEEE Transactions on. — 2001. — Jul. — Vol. 37, no. 4. — Pp. 2275–2277.
- 31 Магнитные свойства мультислойных структур нанокompозит-гидрогенизированный аморфный кремний / В.А. Белоусов, Ю.Е. Калинин, К.Г. Королев [и др.] // Вестник ВГТУ. — 2006. — Vol. 2. — P. 11.
- 32 И.В. Золотухин. Нанокompозитные структуры на пути в нанoeлектронику / И.В. Золотухин, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников // Природа. — 2006. — no. 1. — Pp. 11–19.
- 33 А.В. Иванов. Электрические и магнитные свойства мультислойных структур [(CoFeZr)_x (Al₂O₃)/(α-SiH)]_n / А.В. Иванов, Ю.Е. Калинин, В.Н. Нечаев, А.В. Ситников // Физика твердого тела. — 2009. — Vol. 51, no. 12.
- 34 Multilayer nanogranular films (Co₄₀Fe₄₀B₂₀)₅₀(SiO₂)₅₀/α-Si:H and (Co₄₀Fe₄₀B₂₀)₅₀(SiO₂)₅₀/SiO₂: Magnetic properties / S.V. Komogortsev, E.A. Denisova, R.S. Iskhakov [и др.] // Journal of Applied Physics. — 2013. — Vol. 113, no. 17. — P. 17C105.
- 35 XANES study of interatomic interactions in (CoFeZr)_x(SiO₂)_{1-x} nanocomposites / E. P. Domashevskaya, S. A. Storozhilov, S. Yu. Turishchev [и др.] //

Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. — 2008. — Vol. 72, no. 4. — Pp. 448–452.

- 36 XANES-и USXES-исследования межатомных взаимодействий в нанокompозитах $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ / Э.П. Домашевская, С.А. Сторожилов, С.Ю. Турищев [и др.] // Физика твердого тела. — 2008. — Vol. 50, no. 1.
- 37 Impedance and magnetization of CoFeZr nanoclusters embedded into alumina matrix / A.M. Saad, A.K. Fedotov, I.A. Svito [и др.] // Journal of Alloys and Compounds. — 2006. — Vol. 423, no. 1. — Pp. 176–180.
- 38 Chemical effects at metal/oxide interfaces studied by x-ray-absorption spectroscopy / T. J. Regan, H. Ohldag, C. Stamm [и др.] // Phys. Rev. B. — 2001. — Nov. — Vol. 64. — P. 214422.
- 39 Study of the $[(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}/\text{a-Si:H}]_m$ multilayer nanostructure by polarized neutron reflectometry / E.A. Dyadkina, S.V. Grigoriev, D. Lott [и др.] // Physica B: Condensed Matter. — 2011. — Vol. 406, no. 12. — Pp. 2397–2400.
- 40 Evaluation of Magnetic Materials for Very High Frequency Power Applications / Yehui Han, G. Cheung, An Li [и др.] // Power Electronics, IEEE Transactions on. — 2012. — Jan. — Vol. 27, no. 1. — Pp. 425–435.
- 41 О.В. Дунец. Электрические и магнитные свойства мультислойных структур на основе композита $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{33.9}(\text{SiO}_2)_{66.1}$ / О.В. Дунец, Ю.Е. Калинин, М.А. Каширин, А.В. Ситников // Журнал технической физики. — 2013. — Vol. 83, no. 9.
- 42 А.И. Стогний. Ионно-лучевая установка для получения оксидных пленок / А.И. Стогний, В.Т. Свирин, С.Д. Тушина [и др.] // Приборы и техника эксперимента. — 2001. — no. 3. — Pp. 151–154.
- 43 Новицкий Н. Н. Свойства металлических плёнок и наноструктур полученных методом ионно-лучевого распыления: автореф. дис. ... канд.

- ф.-м. наук Д 01.06.01. — Минск: Институт физики твердого тела и полупроводников НАН Беларуси, 2003. — 23 pp.
- 44 Ситников А. В. Электрические и магнитные свойства наногетерогенных систем металл-диэлектрик: автореф. дис. ... докт. ф.-м. наук: Д 212.037.06. — Воронеж: ГОУ ВПО Воронежский государственный технический университет, 2010. — 29 pp.
- 45 John D. Jackson. Classical electrodynamics / — Wiley New York etc., 1962. — Vol. 3.
- 46 Каплан С.А. Физика звезд. — Наука, 1970.
- 47 Гинзбург В.Л. Теоретическая физика и астрофизика. 1981. — М. Наука.
- 48 Shape, size, strain and correlations in quantum dot systems studied by grazing incidence X-ray scattering methods / T.H. Metzger, I. Kegel, R. Paniago [и др.] // Thin Solid Films. — 1998. — Vol. 336, no. 1. — Pp. 1–8.
- 49 Gilles Renaud. Probing surface and interface morphology with grazing incidence small angle X-ray scattering / Gilles Renaud, Rémi Lazzari, Frédéric Leroy // Surface Science Reports. — 2009. — Vol. 64, no. 8. — Pp. 255–380.
- 50 В.А. Уклеев. Исследование структуры и магнитных свойств магниторезистивных нанокompозитных плёнок $\text{SiO}_2(\text{Co } x\% \text{ ат.})$ на подложке GaAs: маг. дис. — Санкт-Петербург: Санкт-Петербургский Академический Университет НОЦ Нанотехнологий РАН, 2012.
- 51 Meyer A. GISAXS Grazing Incidence Small Angle X-ray Scattering. — <http://www.gisaxs.de/>, 2007.
- 52 CO-Induced Scavenging of Supported Pt Nanoclusters: A GISAXS Study / Nihed Chaábane, Rémi Lazzari, Jacques Jupille [и др.] // The Journal of Physical Chemistry C. — 2012. — Vol. 116, no. 44. — Pp. 23362–23370.

- 53 Evidence for a self-organized growth in granular Co/Al₂O₃ multilayers / D. Babonneau, F. Petroff, J.-L. Maurice [и др.] // Applied Physics Letters. — 2000. — Vol. 76, no. 20. — Pp. 2892–2894.
- 54 D. Babonneau. Morphology and size distribution of gold nanoclusters in a-C:H films studied by grazing incidence small-angle x-ray scattering / D. Babonneau, I.R. Videnović, M.G. Garnier, P. Oelhafen // Physical Review B. — 2001. — Vol. 63, no. 19. — P. 195401.
- 55 Chadwick James. Possible existence of a neutron // Nature. — 1932. — Vol. 129, no. 3252. — P. 312.
- 56 Peter J. Mohr. The 2010 CODATA recommended values of the fundamental physical constants / Peter J. Mohr, Barry N. Taylor, David B. Newell // Web version. — 2011. — Vol. 6, no. 2.
- 57 В.А.Назаренко. Реактор ПИК: проекты научных исследований, экспериментальных установок и оборудования. — <http://nrd.pnpi.spb.ru/sbornik/sbornik.page1.htm>, 2002.
- 58 Колин Уиндзор. Рассеяние нейтронов от импульсных источников: Пер. с англ / Колин Уиндзор, В.К. Игнатович, С.Н. Ишмаев, М.С. Юдкевич. — Энергоатомиздат, 1985.
- 59 Ю.А. Изюмов. Нейтроны и твердое тело / Ю.А. Изюмов, Н.А. Черноплеков. — 1983. — Vol. 3. — P. 240.
- 60 Гуревич И.И. Физика нейтронов низких энергий / Гуревич И.И., Тарасов Л.В. — Наука, 1965.
- 61 Барсуков О. Основы физики атомного ядра. Ядерные технологии. — ЛитРес, 2015.
- 62 Xiao-Lin Zhou. Theoretical foundation of X-ray and neutron reflectometry / Xiao-Lin Zhou, Sow-Hsin Chen // Physics Reports. — 1995. — Vol. 257, no. 4. — Pp. 223–348.

- 63 M.R. Fitzsimmons. Application of polarized neutron reflectometry to studies of artificially structured magnetic materials / M.R. Fitzsimmons, C.F. Majkrzak // *Modern Techniques for Characterizing Magnetic Materials*. — 2005. — Pp. 107–155.
- 64 Parratt Lyman G. Surface studies of solids by total reflection of X-rays // *Physical review*. — 1954. — Vol. 95, no. 2. — P. 359.
- 65 The polarized neutron spectrometer REMUR at the pulsed reactor IBR-2 / V.L. Aksenov, K.N. Jernenkov, S.V. Kozhevnikov [и др.] // *JINR Communications D13-2004-47*. — 2004.
- 66 Zabel Hartmut. Neutron reflectivity of spintronic materials // *Materials Today*. — 2006. — Vol. 9, no. 1. — Pp. 42–49.
- 67 Self-ordering of nanoparticles in magneto-organic composite films / Katharina Theis-Bröhl, Maximilian Wolff, Inga Ennen [и др.] // *Physical Review B*. — 2008. — Vol. 78, no. 13. — P. 134426.
- 68 Clarke John. SQUIDS // *Scientific American*. — 1994. — Vol. 271. — Pp. 46 – 53.
- 69 Konovalov O. ID10 - Soft interfaces and coherent scattering beamline. — 2011. — URL: <http://www.esrf.eu/UsersAndScience/Experiments/CBS/ID10>.
- 70 S.K. Sinha. X-ray and neutron scattering from rough surfaces / S.K. Sinha, E.Bv. Sirota, S. Garoff, H.B. Stanley // *Physical Review B*. — 1988. — Vol. 38, no. 4. — P. 2297.
- 71 Gilles Renaud. Probing surface and interface morphology with grazing incidence small angle X-ray scattering / Gilles Renaud, Rémi Lazzari, Frédéric Leroy // *Surface Science Reports*. — 2009. — Vol. 64, no. 8. — Pp. 255–380.
- 72 Изучение гетероструктуры SiO₂(Co)/GaAs методами поверхностного рассеяния синхротронного излучения / НА Григорьева, АА Воробьев,

- ВА Уклеев [и др.] // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2010. — Vol. 92, no. 11. — Pp. 847–853.
- 73 Родионова В. Статические и динамические магнитные свойства аморфных микропроводов и их систем: автореф. дис. ... канд. ф.-м. наук: Д 501.001.70. — Москва: МГУ имени М.В. Ломоносова. — 29 pp.
- 74 T. Song. A Preisach model for systems with magnetic order / T. Song, R.M. Roshko // Physica B: Condensed Matter. — 2000. — Vol. 275, no. 1. — Pp. 24–27.
- 75 Gerardo F. Goya. Field dependence of blocking temperature in magnetite nanoparticles / Gerardo F. Goya, M.P. Morales // Journal of Metastable and Nanocrystalline Materials / Trans Tech Publ. — Vol. 20. — 2004. — Pp. 673–678.
- 76 Кикоин И.К. Таблицы физических величин. — Рипол Классик, 1976.
- 77 Shell-driven magnetic stability in core-shell nanoparticles / J. Nogués, Vasil Skumryev, J. Sort [и др.] // Physical review letters. — 2006. — Vol. 97, no. 15. — P. 157203.
- 78 J.B. Yi. Exchange coupling in CoO–Co bilayer / J.B. Yi, J. Ding // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2006. — Vol. 303, no. 2. — Pp. e160–e164.
- 79 Matts Björck. GenX: an extensible X-ray reflectivity refinement program utilizing differential evolution / Matts Björck, Gabriella Andersson // Journal of Applied Crystallography. — 2007. — Vol. 40, no. 6. — Pp. 1174–1178.
- 80 Кринчик Г.С. Физика магнитных явлений. — МГУ, 1976.
- 81 Reversal of flux closure states in cobalt nanoparticle rings with coaxial magnetic pulses / Takeshi Kasama, Rafal E. Dunin-Borkowski, Michael R. Scheinfein [и др.] // Advanced Materials. — 2008. — Vol. 20, no. 22. — Pp. 4248–4252.
- 82 William H. Meiklejohn. New magnetic anisotropy / William H. Meiklejohn, Charles P. Bean // Physical Review. — 1957. — Vol. 105, no. 3. — P. 904.

- 83 Effect of magnetic field enhancement of the photocurrent in ferromagnetic metal-dielectric heterostructures SiO₂(Co)/GaAs / V.V. Pavlov, L.V. Lutsev, P.A. Usachev [и др.] // Applied Physics Letters. — 2015. — Vol. 106, no. 15. — P. 152404.
- 84 Brillouin light scattering observation of the transition from the superparamagnetic to the superferromagnetic state in nanogranular (SiO₂) Co films / A.A. Stashkevich, Y. Roussigné, P. Djemia [и др.] // Journal of Applied Physics. — 2008. — Vol. 104, no. 9. — P. 093912.
- 85 Nevill Francis Mott. Electronic processes in non-crystalline materials / Nevill Francis Mott, Edward A. Davis. — Oxford University Press, 2012.
- 86 A.L. Efros. Coulomb gap and low temperature conductivity of disordered systems / A.L. Efros, B.I.s Shklovskii // Journal of Physics C: Solid State Physics. — 1975. — Vol. 8, no. 4. — P. L49.
- 87 Wohlfarth E.P. The magnetic field dependence of the susceptibility peak of some spin glass materials // Journal of Physics F: Metal Physics. — 1980. — Vol. 10, no. 9. — P. L241.