

08,10

Магнитные и магниторезистивные свойства многослойных наноструктур (Co/CoO)₆₀

© Ю.Е. Калинин¹, К.С. Габриельс¹, В.А. Макагонов^{1,¶}, В.А. Фошин¹, Р.Б. Моргунов²,
М.В. Бахметьев², Е.В. Дворецкая², И.И. Ходос²

¹ Воронежский государственный технический университет,
Воронеж, Россия

² Федеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии РАН,
Черноголовка, Россия

¶ E-mail: vlad_makagonov@mail.ru

Поступила в Редакцию 11 января 2025 г.

В окончательной редакции 18 апреля 2025 г.

Принята к публикации 24 апреля 2025 г.

Исследованы структура, электрические, магнитные и магниторезистивные свойства тонких пленок (Co/CoO)₆₀. Методами рентгеновской дифракции и просвечивающей электронной микроскопии было показано, что полученные пленки являются многослойными, при этом увеличение толщины прослойки Co до 0.8 nm приводит к переходу от островковых слоев Co в сплошной матрице CoO к многослойной структуре. Исследования электрических свойств показало, что в исследованной системе происходит последовательная смена доминирующего механизма переноса от прыжкового механизма проводимости по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми с переменной длиной прыжка к прыжкам по ближайшим соседям. Исследования магнитных и магнитооптических свойств показали наличие магнитной анизотропии в образцах вблизи порога протекания и за ним. Магнитосопротивление определяется механизмом спин-зависимого туннелирования между гранулами и кластерами металлического Co для образцов до порога протекания, а за порогом конкурирующими вкладками анизотропного магнитосопротивления перколяционной сетки ферромагнитного кобальта и лоренцева магнитосопротивления.

Ключевые слова: многослойные наноструктуры, удельное электрическое сопротивление, порог протекания, магнитные свойства, анизотропное магнитосопротивление.

DOI: 10.61011/FTT.2025.04.60555.9-25

1. Введение

Композиционные наноструктурированные материалы ферромагнетик-диэлектрик последние годы привлекают интерес многих исследователей [1–3]. Интерес представляют транспортные и магнитные свойства, которые являются ключевыми для современной твердотельной электроники, в развитии которой все большее значение приобретают спин-зависимые процессы, происходящие на границах раздела в гетероструктурах [4,5]. Знание магнитных и электрических свойств тонких композитных плёнок необходимо также для понимания и объяснения механизмов отражения, поглощения электромагнитных волн [6,7].

Особая привлекательность наноструктурированных композитов ферромагнетик-диэлектрик заключается в возможности создания материалов с уникальными и наперед заданными свойствами, что в сочетании с большой устойчивостью к коррозии и к окислению может открыть новые горизонты их применения в различных областях, таких как электроника, энергетика, сенсорика, стрейнэлектроника и каталитические процессы. Экспериментальные исследования композитных пленок, поиск связи материальных параметров (толщина плёнок, слоев и прослоек) с магнитными и электрическими свойствами позволят в будущем оптимизировать процессы промыш-

ленного синтеза подобных структур для конкретных практических применений [8–13]. Для получения полной картины о физических свойствах и процессах, сопровождающих синтез таких композитов, важно исследовать параметры их образования и механизмы влияния морфологии на электрические и магнитные свойства.

Многослойные структуры из слоев кобальта с прослойками антиферромагнитной окиси кобальта представляют особый научный интерес, поскольку в структурах ферромагнетик/антиферромагнетик возможно существование эффекта магнитной близости. Эффект магнитной близости возникает между двумя разнородными магнитными компонентами на атомном уровне и из-за появления обменных взаимодействий между ними [14,15]. Он может проявляться одновременно с эффектом обменного смещения (exchange bias effect), иногда называемого однонаправленной или обменной анизотропией.

Настоящая работа посвящена синтезу и исследованию электрических и магниторезистивных свойств многослойных структур ферромагнитного кобальта с прослойками антиферромагнитной окиси кобальта.

2. Образцы и методика эксперимента

Тонкие пленки (Co/CoO)₆₀ были получены методом ионно-лучевого распыления керамической мишени CoO

и металлического Co в атмосфере аргона с чистотой 99.998% при давлении $P = 64$ мПа на неподогреваемую дополнительно подложку [16]. Температура подложки в процессе напыления не превышала 400 К. Мишени были закреплены на водоохлаждаемых медных основаниях с размером 280×80 мм² и размещены в разных положениях распыления в вакуумной камере. Для того, чтобы осуществить послойное осаждение, подложка перемещалась из одного положения распыления в другое путем вращения подложкодержателя вокруг оси напылительной камеры. Осаждение велось на подложки из монокристаллического кремния с кристаллографической ориентацией (100) для исследования структуры и ситалла для исследования электрофизических свойств. Для получения различных толщин прослоек Co в ходе единого процесса напыления между мишенью Co и держателем подложки был установлен Λ -образный экран. Скорость вращения была равна 0.1 rev/min. Число оборотов держателя подложки задавало количество бислоев в многослойной пленке и равнялось 60, что отражено нижним индексом в обозначении исследованных гетероструктур (Co/CoO)₆₀.

Для предварительной оценки толщины слоев осуществлялось предварительное напыление отдельных пленок Co и CoO с подобранными ранее для многослойной структуры параметрами процесса. Измерение толщины полученных пленок проводилось с помощью оптического интерферометра МИИ-4 на образцах, расположенных на подложкодержателе вдоль прямой, параллельной оси Λ -образного экрана. Точки измерения толщины фиксировались относительно расположения подложки и мишени. Измеренные данные толщины пленки аппроксимировались. Зная число оборотов подложкодержателя, рассчитывалась толщина пленки, полученная за одно прохождение подложкой зоны нанесения материала, т.е. толщина монослоя одного из напыляемых компонент. Аналогичным образом определялась толщина монослоя второй компоненты многослойной структуры. Для полученных тонких пленок значение толщины монослоя Co изменялось от 0.2 до 1.4 nm, а CoO составило ≈ 2.4 nm. Следует отметить, что полученное таким образом значение толщины монослоя является эквивалентным и не учитывает возможность островкового роста, т.е. это толщина тонкой пленки, нанесенной за один оборот подложкодержателя при условии, что эта пленка является сплошной. Таким образом, учитывая, что толщина прослоек CoO больше толщины прослоек Co, вероятно с увеличением толщины прослойки Co происходит переход от двухфазной пленки из островковых слоев Co в сплошной матрице CoO, сформированной в процессе послойного осаждения, к многослойной структуре, состоящей из сплошных слоев металлического Co и непроводящего электрический ток CoO. Поэтому в дальнейшем будет целесообразно полученные экспериментальные результаты рассматривать в зависимости от эквивалентной толщины прослойки Co, как параметра наиболее критическим образом, влияю-

щего на структуру и физические свойства исследуемых тонких пленок.

Локальный химический состав определяли с помощью растрового электроннозондового микроанализатора JEOL Superprobe-733. Структура полученных тонких пленок была исследована с помощью рентгенофазового (РФА) и электронно-микроскопического анализа (ПЭМ). Для проведения исследований структуры композитов методом РФА были использованы тонкие пленки, напыленные на подложку из монокристаллического кремния с кристаллографической ориентацией (100).

Удельное электрическое сопротивление было измерено по четырехпроводной схеме на постоянном токе с помощью универсального цифрового мультиметра В7-78/1 вдоль плоскости пленки и слоев многослойной структуры. Измерение термоэдс от толщины пленок проводилось дифференциальным методом (в качестве материала холодного и горячего зондов служила серебряная проволока чистотой 99.99%). Относительная погрешность измерения не превышала 3%.

Изображения локальной намагниченности были получены с использованием микроскопа NEOARK Neomagnesia Lite ВН-753 с возможностью изучения меридионального магнитооптического эффекта Керра (МОКЕ). Петли магнитного гистерезиса в диапазоне температур 2–300 К были получены с помощью вибрационного магнитометра Cryogen Free Measurement System (Cryogenic Ltd., Великобритания).

3. Результаты эксперимента и их обсуждение

3.1. Структура тонких пленок (Co/CoO)₆₀

На рис. 1 представлены картины рентгеновской дифракции от тонких пленок (Co/CoO)₆₀. Цифрами у кривых показаны значения эквивалентной толщины прослоек Co (h_{Co}). Из анализа картин малоугловой дифракции следует, что в тонких пленках (Co/CoO)₆₀ наблюдается слоистая структура, о чем свидетельствует наличие максимумов в диапазоне брегговских углов $1-7^\circ$ и увеличение их интенсивности с ростом толщины прослойки Co. Величина периода многослойных структур (Co/CoO)₆₀ (толщина бислоя), рассчитанная из рис. 1, a , изменялась от 2.6 до 3.8 nm. Общее число бислоев из условий получения составило 60, что соответствует диапазону толщин всех пленок от 156 до 228 nm. Форма пиков сложная, что в целом может быть интерпретировано как некоторое отклонение от периодичности (нерегулярность толщин отдельных слоев, связанная с их островковым ростом). Вероятно, несимметричность максимумов также является следствием формирования на межфазных границах Co–CoO дополнительных прослоек, близких по составу к Co₃O₄. Результаты анализа картин рентгеновской дифракции в области средних брегговских углов $30-80^\circ$ не противоречат нашим предположениям.

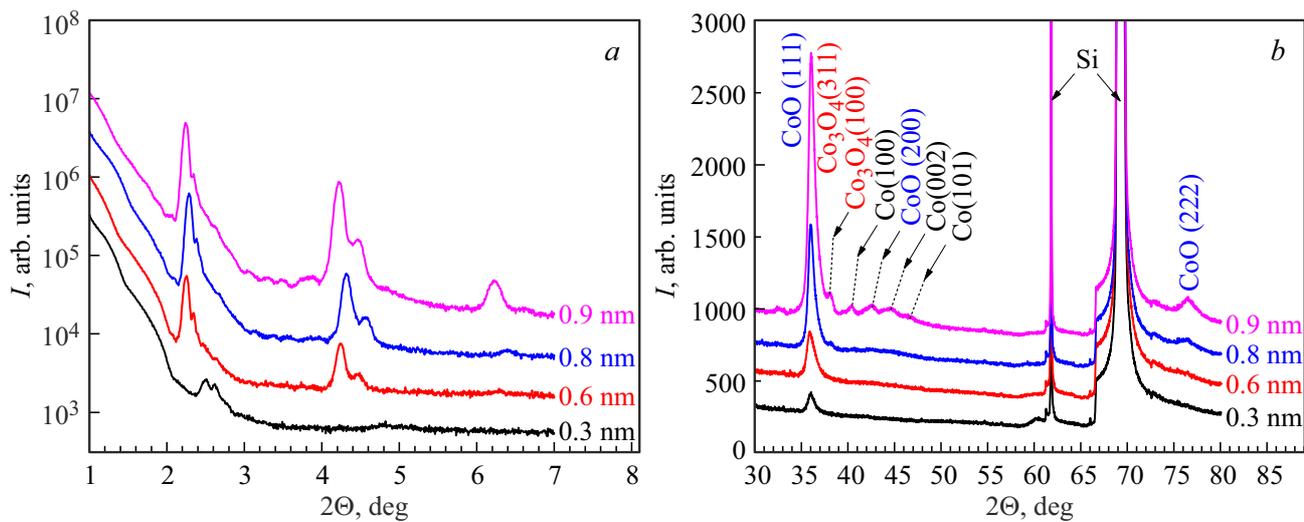


Рис. 1. Картины рентгеновской дифракции от тонких пленок $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, измеренные в области малых (а) и средних (б) брэгговских углов. Цифрами у кривых показаны значения эквивалентной толщины прослоек Co.

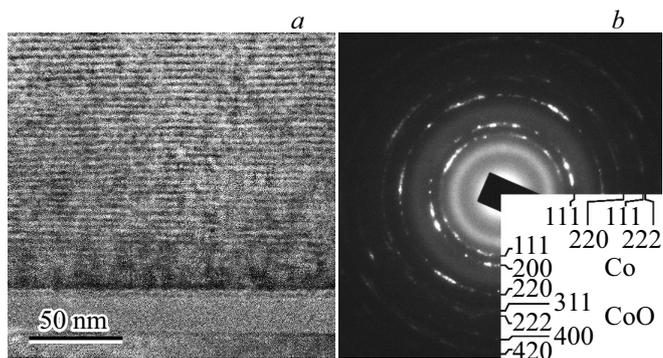


Рис. 2. Светлопольное ПЭМ изображение поперечного сечения (а) и электронограмма (б) от многослойной структуры $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ ($h_{\text{Co}} = 0.6 \text{ nm}$).

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

Помимо фазы кубического CoO на дифрактограммах исследованных образцов при толщинах прослойки Co более 0.8 nm были идентифицированы максимумы Co_3O_4 .

Что же касается металлической фазы исследованных тонких пленок, то для образцов с эквивалентной толщиной прослойки Co не превышающей 0.8 nm (рис. 1, б) в интервале $40\text{--}50^\circ$ максимумы от металлического кобальта не наблюдаются и становятся различимыми на дифрактограммах лишь при эквивалентных толщинах прослойки Co более 0.8 nm. Следует отметить, что угловое положение рефлексов Co не совсем совпадает с табличными данными, что может указывать на наличие макронапряжений в самой многослойной пленке.

Исследования структуры методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) подтвердили формирование прослоек Co и многослойной структуры (рис. 2, а), а картины дифракции быстрых электронов — кристаллическую структуру слоев CoO и Co (рис. 2, б).

Значения толщин прослоек Co и CoO, полученные из изображений ПЭМ для исследуемого образца, согласуются с результатами, полученными из картин дифракции рентгеновских лучей в области малых брэгговских углов (рис. 1, а).

3.2. Электрические свойства тонких пленок $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$

Как уже было отмечено ранее, для тонких пленок $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ формируется слоистая структура, при этом с увеличением эквивалентной толщины прослойки Co происходит переход от островковых слоев Co в сплошной матрице CoO, сформированной в процессе послойного осаждения, к многослойной структуре, состоящей из сплошных слоев металлического Co и непроводящего электрический ток CoO. Подобные изменения в морфологии полученных тонких пленок должны кардинальным образом оказать влияние на электрические, магнитные и прочие физические свойства полученных тонких пленок. На рис. 3 приведены зависимости удельного электрического сопротивления и термоэдс тонких пленок $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ от эквивалентной толщины прослойки Co (h_{Co}). Знак термоэдс в синтезированных тонких пленках отрицательный, что свидетельствует о доминирующем вкладе электронов в электроперенос.

Полученные зависимости характерны для перколяционных систем, для которых изменение удельного электрического сопротивления при переходе через порог протекания изменяется на несколько, в нашем случае почти на восемь, порядков величины. При этом середину

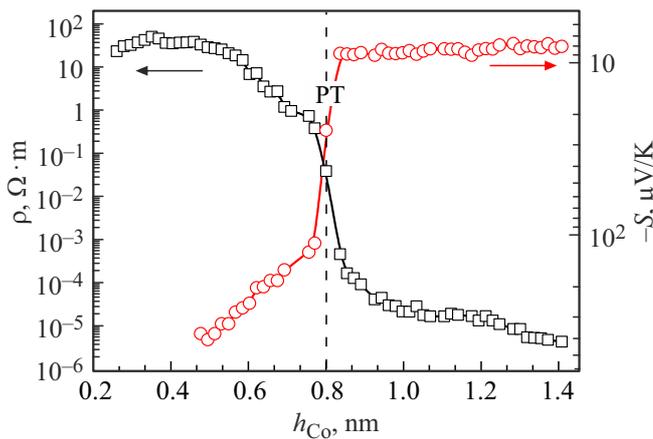


Рис. 3. Зависимости удельного электрического сопротивления ρ и термоэдс S тонких пленок (Co/CoO)₆₀ от эквивалентной толщины прослойки Co (h_{Co}). Штриховой линией с обозначением PT обозначен порог протекания (percolation threshold) системы (Co/CoO)₆₀.

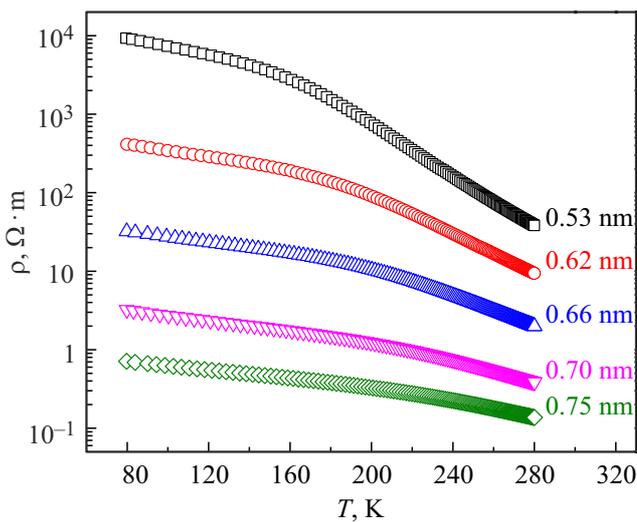


Рис. 4. Температурные зависимости удельного электрического сопротивления тонких пленок (Co/CoO)₆₀. Цифрами у кривых показаны значения эквивалентной толщины прослоек Co.

участка наиболее резкого изменения удельного электрического сопротивления и термоэдс можно интерпретировать как порог протекания (percolation threshold) в системе металл–диэлектрик, связанный с переходом от островковых прослоек Co к сплошным. В нашем случае такой переход происходит при эквивалентной толщине прослойки Co равной ≈ 0.8 nm, что сопровождается резким уменьшением по модулю значения термоэдс и слабой зависимостью от эквивалентной толщины прослойки Co в области $h_{Co} > 0.8$ nm. При этом значение термоэдс образцов за порогом протекания характерны для значений термоэдс чистого кобальта [17].

Для установления особенностей электропереноса в полученных структурах были изучены температурные

зависимости удельного электрического сопротивления. Для многослойных гетероструктур (Co/CoO)₆₀ с эквивалентной толщиной менее 0.8 nm (до порога протекания), удельное электрическое сопротивление с ростом температуры уменьшалось (рис. 4), а для образцов с эквивалентной толщиной более 0.8 nm температурный коэффициент был положительным (не показаны на рисунке), как это имеет место в металлах.

Для анализа доминирующих механизмов электропереноса зависимости $\rho \propto f(T)$ образцов до порога протекания были перестроены в координатах $\ln \rho \propto f(T^{-n})$, где n принимали значения 1/4, 1/3, 1/2, 1, а также $\ln \rho \propto f(\ln T)$.

Анализ данных рис. 4 показал, что в области температур 80–140 K удельное электрическое сопротивление аппроксимируется прямой линией в координатах $\ln \rho \propto f(T^{-1/4})$ (рис. 5, a), что указывает на прыжковый механизм проводимости носителей заряда с переменной длиной прыжка по локализованным состояниям, лежащим в узкой полосе энергий вблизи уровня Ферми, а в диапазоне температур 140–280 K — зависимостью $\ln \rho \propto f(1/T)$ (рис. 5, b).

Если интерпретировать выполнение „закона 1/4“ как проявление прыжковой проводимости по локализованным состояниям в узкой полосе энергий вблизи уровня Ферми (проводимость Мотта), тогда выражение для проводимости имеет следующий вид [18]:

$$\sigma = e^2 \cdot R^2 \cdot v_{ph} \cdot g(E_F) \cdot \exp\left(-\frac{B}{T}\right)^{1/4}, \quad (1)$$

где

$$B = \frac{21}{a^3 \cdot k \cdot g(E_F)}, \quad (2)$$

где e — заряд электрона, R — расстояние прыжка, v_{ph} — фактор спектра фононов взаимодействия, T — абсолютная температура, $g(E_F)$ — плотность состояний на уровне Ферми, a — радиус локализации волновой функции электрона, k — постоянная Больцмана.

Из рис. 5, a были определены значения параметра B для исследованных составов пленок. Зная B и предполагая, что процесс переноса носителей заряда для образцов до порога протекания лимитируется прыжками между нанокристаллитами Co в островковых слоях в сплошной матрице CoO, проведем оценки плотности локализованных состояний. Радиус локализации примем равным размеру кристаллитов Co, которые в нашем случае пропорциональны средней эквивалентной толщине прослоек Co и равны ≈ 0.6 nm. Результаты оценок приведены на рис. 6, a.

Проведем также оценки средней энергии прыжка, которая в случае прыжков с переменной длиной прыжка должна быть равна:

$$W_M = \frac{1}{4} kT \left(\frac{B}{T}\right)^{1/4} \quad (3)$$

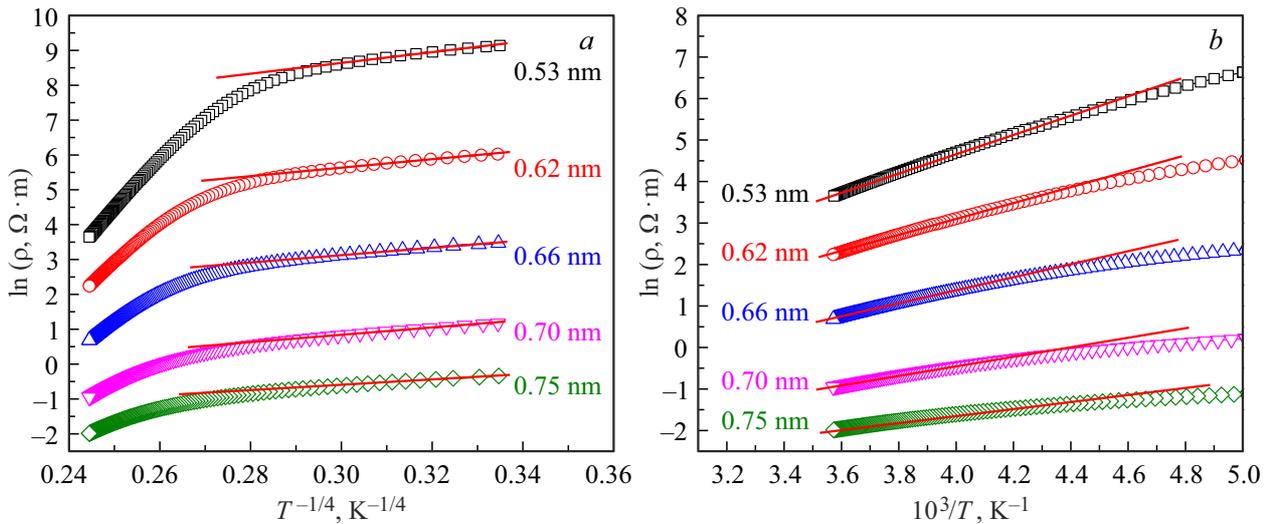


Рис. 5. Температурные зависимости электрического сопротивления тонких пленок $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$, представленные в координатах $\ln \rho \propto f(T^{-1/4})$ (a) и $\ln \rho \propto f(1/T)$ (b). Цифрами у кривых показаны значения эквивалентной толщины прослоек Co.

и средней длины прыжков носителей заряда при температуре $T = 100$ К по формуле:

$$R_M = \frac{3}{8} a \left(\frac{B}{T} \right)^{1/4}. \quad (4)$$

Результаты проведенных оценок представлены на рис. 6. Отличительной чертой всех полученных зависимостей является насыщение при приближении значения эквивалентной толщины прослоек Co к порогу протекания. Так, значения плотности локализованных состояний на уровне Ферми с ростом эквивалентной толщины прослоек Co стремится к значению $g(E_F) \approx 10^{23} \text{ eV}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$, характерному для металлического кобальта [19].

Как отмечалось выше, температурные зависимости удельного электрического сопротивления исследованных тонких пленок в диапазоне температур 140–280 К подчиняются аррениусовской зависимости ($\ln \rho \propto 1/T$) (рис. 5, b).

Если рассматривать обозначенный температурный интервал как область реализации прыжковой проводимости по ближайшим соседям, тогда, согласно [18] для проводимости должно быть справедливо равенство (5):

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(\frac{W_{NNH}}{k_B T}\right), \quad (5)$$

где W_{NNH} — энергия активации прыжка, задаваемая для прыжков по ближайшим соседям выражением:

$$W_{NNH} = \frac{3}{4\pi R_0^3 g(E_F)}, \quad (6)$$

где R_0 — среднее расстояние между ближайшими соседями, $g(E_F)$ — плотность состояний на уровне Ферми.

Используя формулы (5) и (6), из рис. 5, b оценим значения среднее расстояние между ближайшими соседями, энергии активации прыжка, полученные результаты представлены на рис. 7.

Следует отметить, что приведенные на рис. 6 и 7 оценки параметров прыжкового электропереноса носят исключительно качественный характер, так как не учитывают морфологических особенностей электропереноса, в частности многослойности изучаемых структур, а примененные формулы справедливы лишь для однородных веществ. Тем не менее, из представленных на рис. 6 и 7 оценок параметров прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка, следует, что увеличение эквивалентной толщины прослоек Co приводит к увеличению плотности локализованных состояний вблизи уровня Ферми и уменьшению энергии и средней длины прыжка. При переходе к прыжкам по ближайшим соседям энергия активации прыжка увеличивается, а средний радиус прыжка — уменьшается для всех образцов с эквивалентной толщиной прослойки до порога протекания.

3.3. Магнитные свойства тонких пленок $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$

На рис. 8, a представлена петля гистерезиса магнитооптического эффекта Керра (МОКЕ) многослойной пленки $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной прослойки Co, равной 0.7 нм, т. е. вблизи порога протекания. На вставке показана схема измерения при изменении угла θ между внешним магнитным полем и одной из сторон в плоскости образца (вставка на рис. 8, a). На рис. 8, b показаны фотографии доменов в поляризованном свете микроскопа на основе эффекта Керра в магнитных полях +151.1 (1), -79.6 (2), -148.2 (3), -63.3 (4), +61.6 (5) и +152.2 Ое (6).

Темные и светлые области соответствуют противоположным направлениям намагниченности, лежащей в плоскости пленки. Изменение магнитного поля вызывает рост темного поля и подавление светлого в положительных полях и обратный процесс в отрицательных

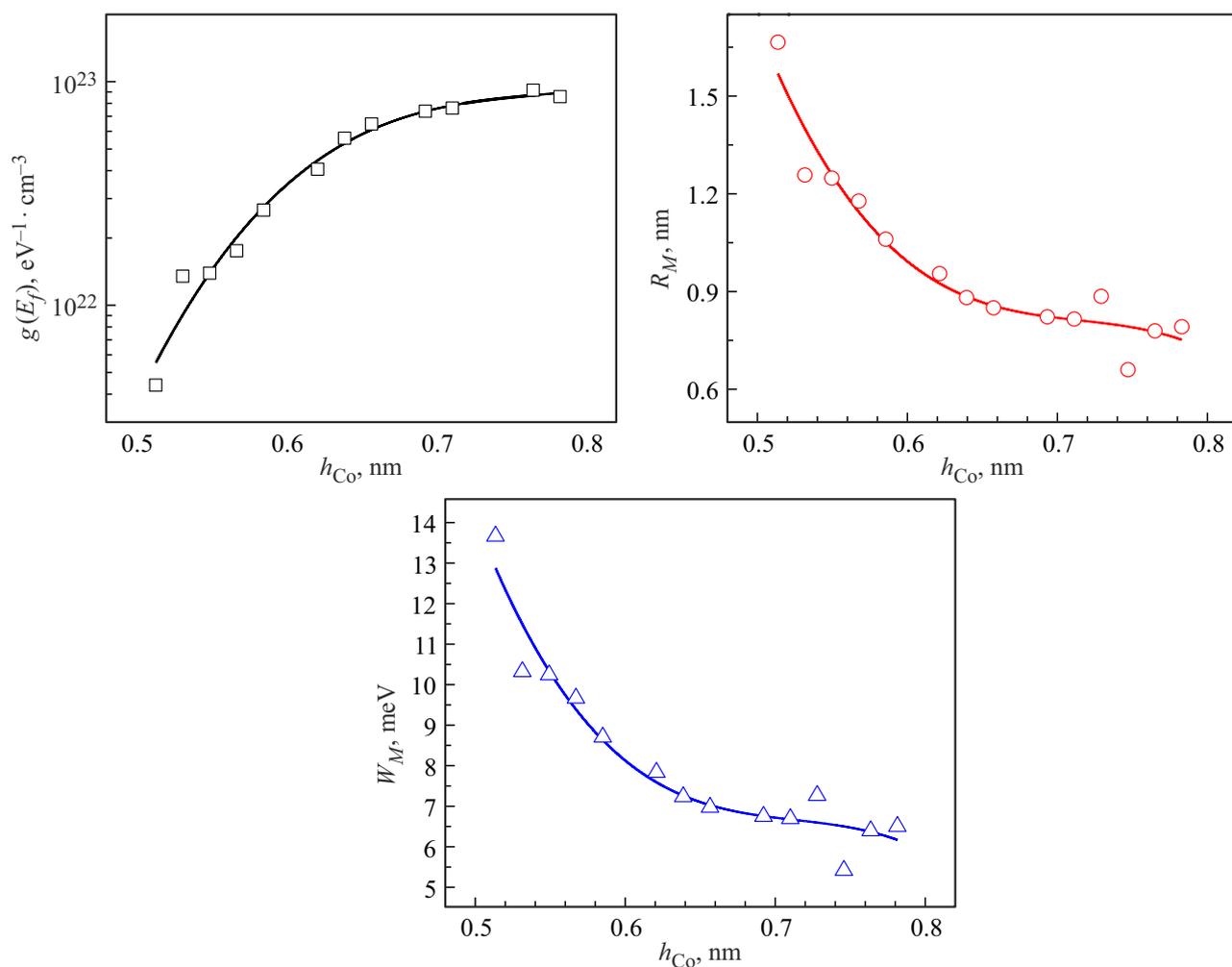


Рис. 6. Параметры тонких пленок (Co/CoO)₆₀, рассчитанные согласно модели прыжковой проводимости по локализованным состояниям в узкой полосе энергий вблизи уровня Ферми, в зависимости от эквивалентной толщины прослоек Co.

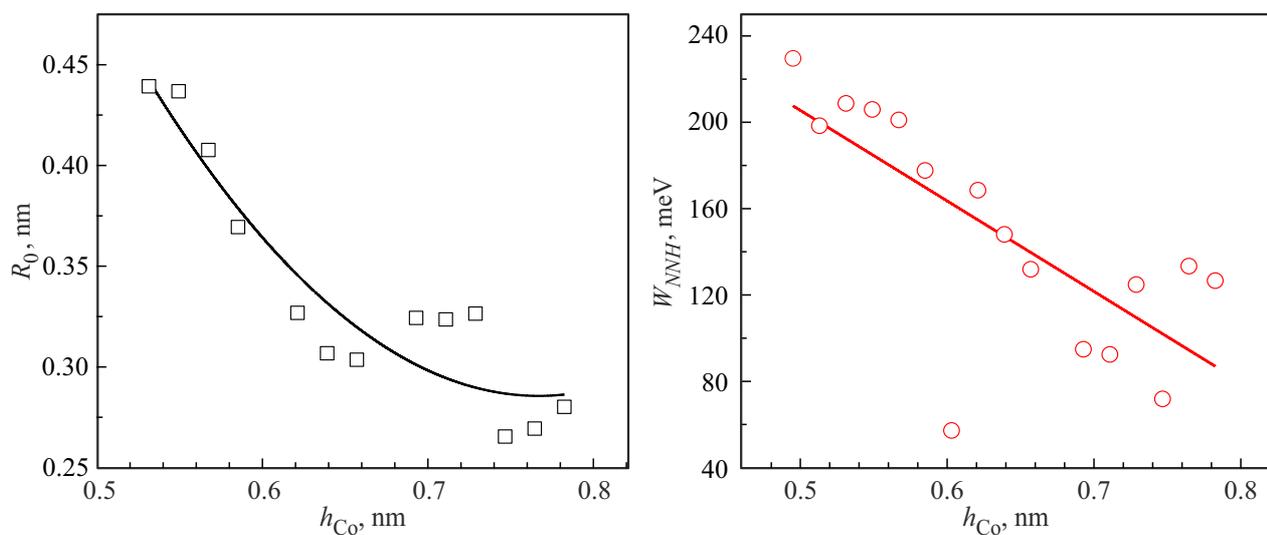


Рис. 7. Параметры тонких пленок (Co/CoO)₆₀, рассчитанные согласно модели прыжковой проводимости по ближайшим соседям, в зависимости от эквивалентной толщины прослоек Co.

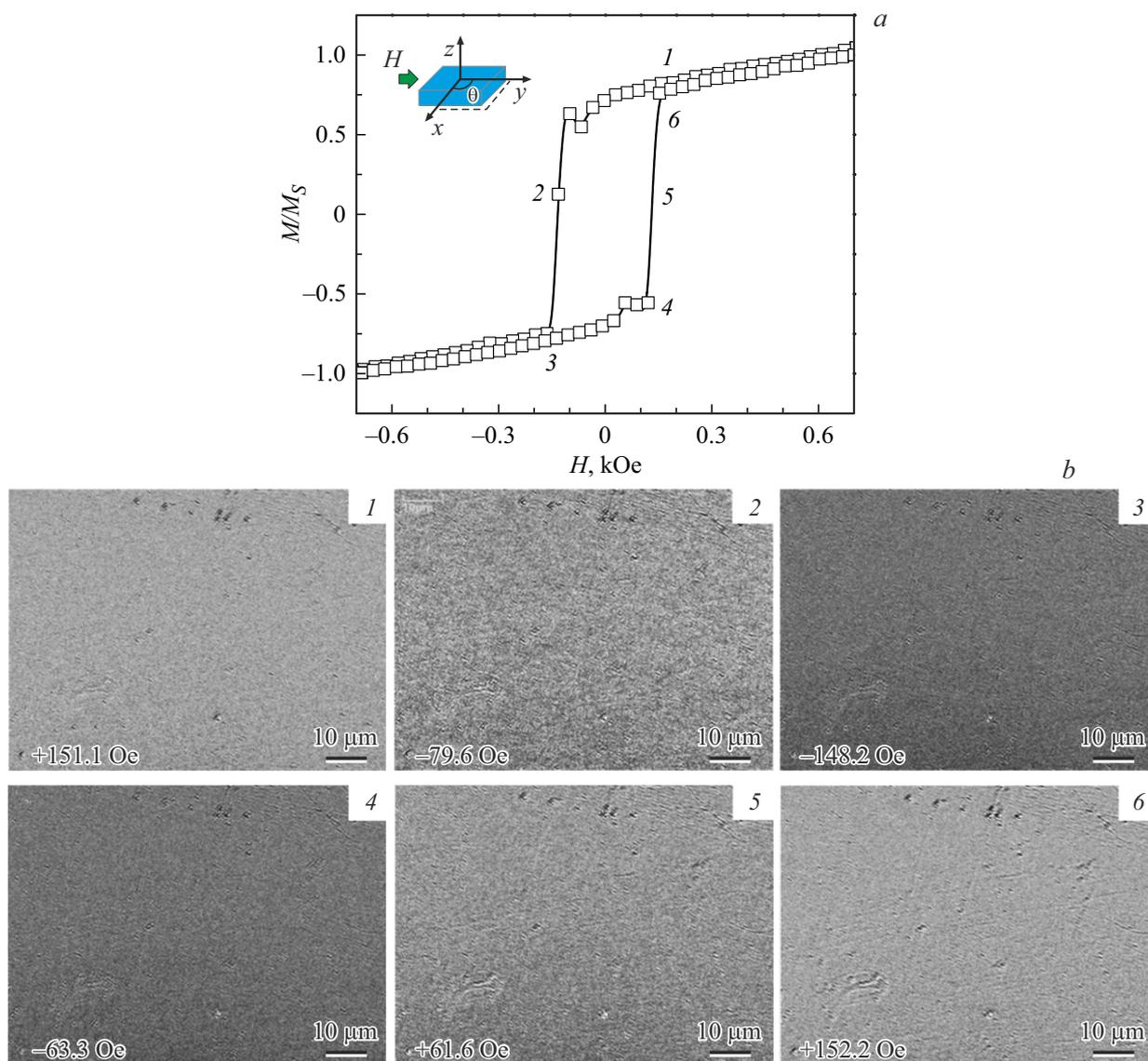


Рис. 8. Петля гистерезиса МОКЕ многослойной пленки $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной прослойки Co , равной 0.7 nm , т. е. вблизи порога протекания (а) — на вставке представлена схема измерения при изменении угла θ между внешним магнитным полем и одной из сторон в плоскости образца (вставка на рис. 8, а). Фотографии доменов (б) в поляризованном свете микроскопа на основе эффекта Керра в магнитных полях $+151.1$ (1), -79.6 (2), -148.2 (3), -63.3 (4), $+61.6$ (5) и $+152.2$ Oe (6).

полях. Изменение направления намагниченности сопровождается распространением зародышей размерами $\approx 1-2 \mu\text{m}$.

На рис. 9 представлены петли гистерезиса МОКЕ этого же образца при изменении θ от 0 до 90° при комнатной температуре. Изучение магнитооптического эффекта Керра показало наличие магнитной анизотропии, при этом оси легкой (ОЛН) и трудной (ОТН) намагниченности находятся в плоскости пленки и перпендикулярны друг другу (рис. 9).

Поскольку метод МОКЕ позволяет с высокой скоростью записывать петли гистерезиса на локальной поверхности образца, были выявлены скачки намагниченности (рис. 9 при $\theta = 0^\circ$, $\theta = 40^\circ$), которые со-

ставляют $\Delta M \approx 0.2\%$. Главными необычными особенностями скачков являются их небольшая длительность $\approx 2 \text{ s}$. Это обстоятельство не позволяет стандартно автоматизировать регистрацию и математическую обработку скачков намагниченности. Возможными причинами появления скачка намагниченности могут являться конкуренция отдельных зародышей намагниченности островкового Co , либо отдельные квазисостояния некоторых островковых кластеров Co в объеме образца.

Петли гистерезиса образца CoO/Co до порога протекания в диапазоне температур $2-300 \text{ K}$, измеренные с помощью вибрационного магнитометра, показали наличие ферромагнетизма вплоть до $T = 100 \text{ K}$ и его отсут-

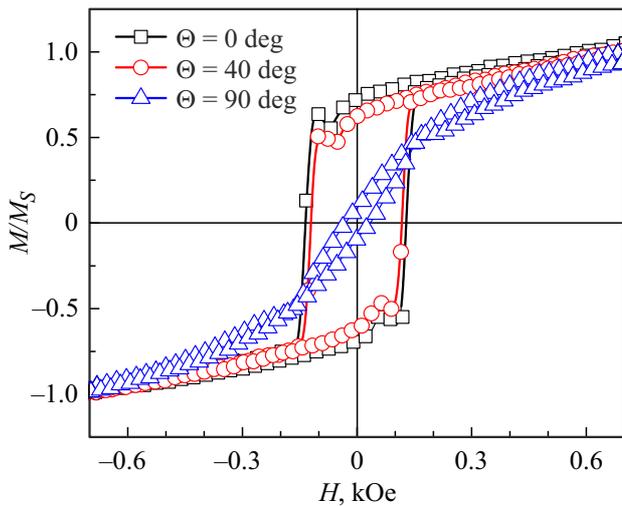


Рис. 9. Петли гистерезиса МОКЕ для образца многослойной пленки (Co/CoO)₆₀ с эквивалентной толщиной прослойки Co, равной 0.7 nm, т.е. вблизи порога протекания при изменении угла θ между внешним магнитным полем и плоскостью образца от 0 до 90° при комнатной температуре. Внешнее магнитное поле лежит параллельно плоскости образца.

стве при более высоких температурах, что характерно для суперпарамагнитного состояния образца, когда вместо многослойной структуры формируется композит Co-CoO с матрицей оксида кобальта и гранулами чистого кобальта. Стоит отметить, что при регистрации петель гистерезисов вибрационным магнитометром никаких скачков намагниченности не было зарегистрировано, так как скорость записи этим методом намного меньше, чем у МОКЕ.

В качестве примеров на рис. 10 показаны кривые намагниченности для образца многослойной пленки (Co/CoO)₆₀ до порога протекания, измеренные с помощью вибрационного магнитометра.

Интересен факт, что для многослойной пленки (Co/CoO)₆₀ до и вблизи порога протекания не было зарегистрировано эффектов магнитной близости и обменного смещения. Вероятно, это имело место, поскольку экспериментальное наблюдение этих эффектов подразумевает охлаждение образца ниже температуры блокировки CoO в магнитном поле. В наших экспериментах предварительного охлаждения в магнитном поле перед записью петель гистерезиса не проводилось.

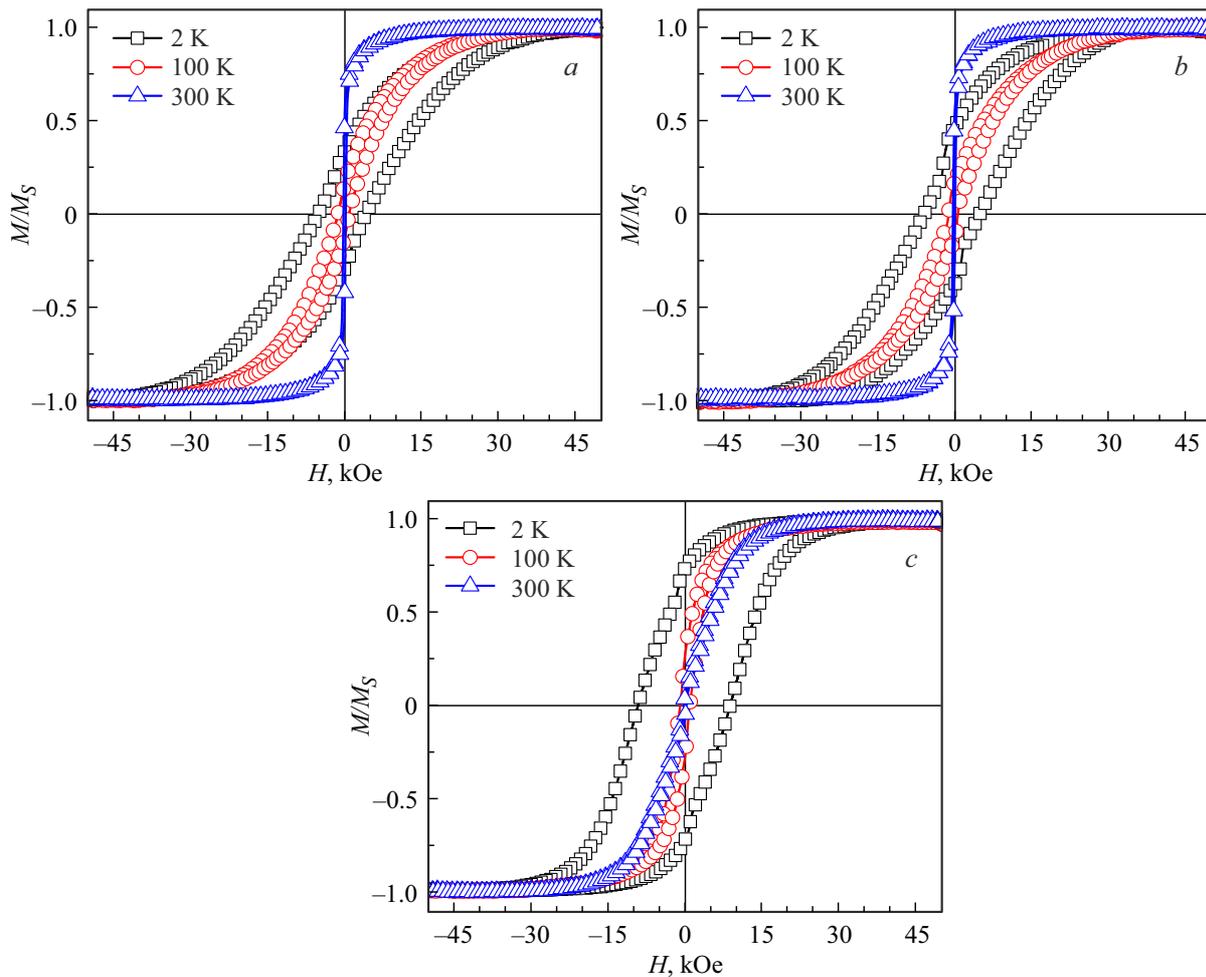


Рис. 10. Петли гистерезиса в диапазоне температур 2–300 K для образца многослойной пленки (Co/CoO)₆₀ с эквивалентной толщиной прослойки Co, равной 0.7 nm, т.е. вблизи порога протекания. Внешнее магнитное поле направлено параллельно плоскости образца при $\theta = 0$ deg (a), при $\theta = 90$ deg (b) и перпендикулярно плоскости образца (c).

3.4. Магнитосопротивление тонких пленок (Co/CoO)₆₀

Зависимости электрического сопротивления синтезированных пленок от величины внешнего магнитного поля изучались при различных взаимных ориентациях магнитного поля, электрического тока, а также плоскости пленки: магнитное поле перпендикулярно плоскости образца и направлению электрического тока ($H \perp pl$, $H \perp I$) (рис. 11, *a*), магнитное поле параллельно плоскости образца и направлению электрического тока ($H \parallel pl$, $H \parallel I$) (рис. 11, *b*), магнитное поле параллельно плоскости образца и перпендикулярно направлению электрического тока ($H \parallel pl$, $H \perp I$) (рис. 11, *c*).

Величину магнитосопротивления (МС) определяли из выражения:

$$MR = [(R(H) - R(0))/R(0)] \cdot 100\%, \quad (7)$$

где $R(H)$ и $R(0)$ — значения электросопротивления, измеренные в магнитном поле и без поля соответственно.

Анализ зависимостей электрического сопротивления тонких пленок (Co/CoO)₆₀ от напряженности внешнего магнитного поля при температуре 300 К показал, что в пленках до порога протекания (при эквивалентной толщине прослойки Co менее ~ 0.8 nm) МС отрицательно и изотропно, т.е. не зависит от взаимной ориентации магнитного поля, тока и плоскости пленки в диапазоне напряженности поля до 9 кОе (рис. 12). Меньшие значения величины МС, измеренного при напряженности поля порядка 9 кОе при ориентации магнитного поля перпендикулярно плоскости пленки ($H \perp pl$ рис. 12, *a*) в сравнении со случаем, когда магнитное поле было направлено вдоль плоскости пленки ($H \parallel pl$ рис. 11, *b*), связано с влиянием размагничивающего фактора. С понижением температуры на полевых зависимостях запороговых пленок (Co/CoO)₆₀, появляются участки положительного магнитосопротивления (ПМС) характеризующиеся наличием максимума в области полей порядка 3 кОе, которое также является изотропным. Возможным объяснением подобных зависимостей МС допороговых пленок (Co/CoO)₆₀ может служить наличие в структуре прослоек кобальта не только отдельных наногранул Co, но также кластеров Co со значительно различающимися величинами магнитной анизотропии и диполь-дипольным взаимодействием между кластерами и ближайшими гранулами, как это имело место в наногранулированных композитах Co-Al₂O_n [20].

Для образцов с эквивалентной толщиной прослойки Co более 0.8 nm, т.е. находящихся за порогом протекания, в отличие от допороговых, было обнаружено анизотропное МС, при этом не только величина, но и знак МС определяются взаимной ориентацией тока, магнитного поля и плоскости образца: для случая $H \perp pl$, $H \perp I$ МС положительно, в то время как для $H \parallel pl$, $H \parallel I$ — отрицательно. Величина МС запороговых образцов не превышала по модулю $\approx 0.07\%$, что более чем на порядок меньше величины МС для образцов до порога

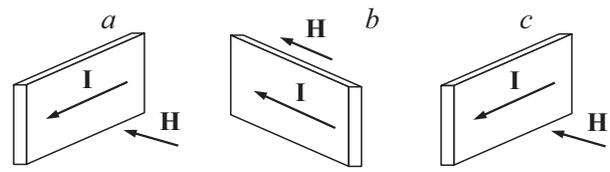


Рис. 11. Схематические изображения, поясняющие методику изучения зависимостей магнитосопротивления от напряженности внешнего магнитного поля при различных ориентациях поля, электрического тока и плоскости пленки: ($H \perp pl$, $H \perp I$) (*a*), ($H \parallel pl$, $H \parallel I$) (*b*), ($H \parallel pl$, $H \perp I$) (*c*).

протекания. В отличие от тонких пленок $\text{Co}(\text{CoO})_{100-n}$, полученных методом ионно-лучевого распыления составной мишени [4], для тонких пленок (Co/CoO)₆₀ гистерезиса на зависимостях МС(H), измеренных при комнатной температуре, обнаружено не было. Однако гистерезис МС доперколяционных образцов появляется при измерении в области низких температур (77 К), также как и положительная составляющая (рис. 12, *c, d*).

При эквивалентной толщине $h_{\text{Co}} < 0.8$ nm прослойки кобальта не являются сплошными. В таких пленках атомы кобальта собираются в гранулы и кластеры, разделенные друг от друга тонкой диэлектрической прослойкой. Поскольку толщина прослоек CoO в полученных тонких пленках ≈ 2.4 nm, то вероятность туннелирования между гранулами разных слоев значительно меньше вероятности туннелирования между гранулами одного слоя. С увеличением эквивалентной толщины слоев кобальта, размеры гранул и кластеров увеличиваются, расстояние между ними уменьшается, что приводит к появлению сильного диполь-дипольного взаимодействия как между гранулами и кластерами в пределах прослоек и между слоями, обуславливающего наличие ферромагнитного упорядочения и уменьшение величины туннельного магнитосопротивления.

При дальнейшем увеличении эквивалентной толщины прослоек Co при $h_{\text{Co}} > 0.8$ nm для образцов за порогом протекания электрические и магнитные свойства полученных тонких пленок (Co/CoO)₆₀ могут определяться квазисплошными прослойками металлического кобальта. Следует также отметить, что при послойном осаждении форма кластеров будет преимущественно двумерная, что должно привести к появлению сильной магнитной анизотропии полученных пленок и как следствие появление анизотропного МС (АМС) [21,22].

АМС характерно для ферромагнитных материалов, где электрическое сопротивление зависит от угла между направлением намагниченности образца и внешним магнитным полем. Причина заключается в спин-орбитальном взаимодействии электронов, приводящем к спин-зависимому рассеянию электронов (коэффициент рассеяния для спинов сонаправленных и противонаправленных по отношению к намагниченности образца будет различный). Особенно велика магнитная анизотропия

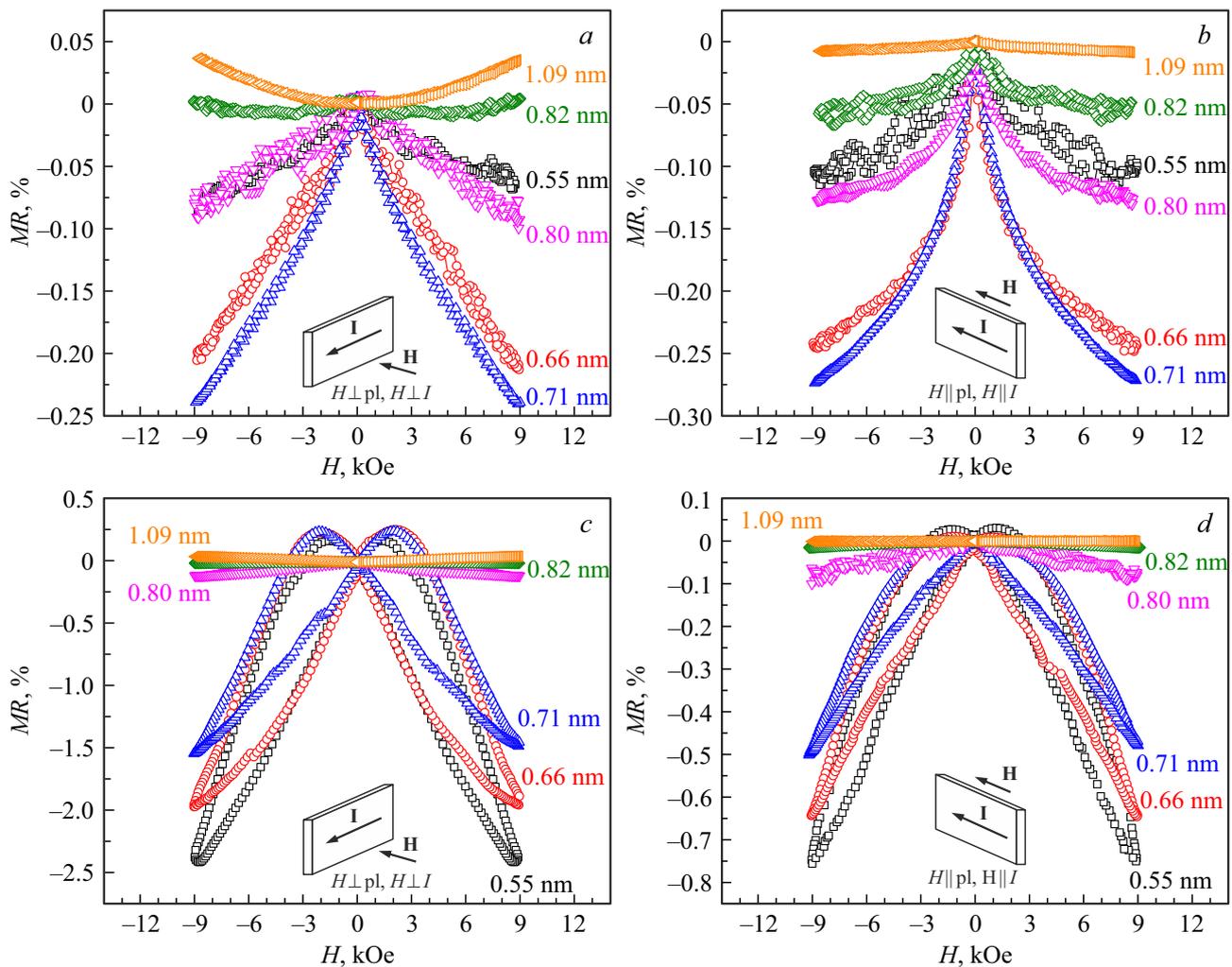


Рис. 12. Зависимости магнитосопротивления MR от напряженности внешнего магнитного поля H для многослойных тонких пленок $(Co/CoO)_{60}$, измеренные при температуре 300 К: $(H \perp pl, H \perp I)$ (a), $(H \parallel pl, H \parallel I)$ (b); измеренные при температуре 77 К: $(H \perp pl, H \perp I)$ (c), $(H \parallel pl, H \parallel I)$ (d). Цифрами у кривых показаны значения толщины прослоек Co.

в монокристаллах ферромагнетиков [23,24], где она проявляется в наличии осей лёгкого намагничивания, вдоль которых направлены векторы самопроизвольной намагниченности ферромагнитных доменов.

Действительно, для образцов вблизи и за порогом протекания было обнаружено АМС (рис. 13, a). В случае, когда магнитное поле направлено вдоль плоскости пленки, МС было отрицательно независимо от взаимной ориентации магнитного поля и электрического тока (зависимости 1, 2 и 4, 5 рис. 13, a), однако максимальная величина МС зависела от направления прохождения электрического тока относительно одной из сторон образца, что может указывать на наличие магнитной анизотропии в плоскости пленки. С ростом толщины прослойки Co отрицательное МС уменьшалось (рис. 12).

Изучение магнитооптического эффекта Керра показало наличие магнитной анизотропии в образцах вблизи порога протекания и за ним. При этом оси легкой (ОЛН) (easy axis) и трудной (ОТН) (hard axis) намагниченности

находятся в плоскости пленки и перпендикулярны друг другу (рис. 13, b). Однако, как это видно из рис. 9, ОЛН образуют конус с достаточно большим углом раствора (более 80 град). Следует уточнить, что наблюдаемые ОЛН и ОТН являются проекциями на плоскость пленки. Определение пространственного расположения ОЛН и ОТН, т.е. их углового отклонения относительно плоскости пленки не представляется возможным по причине влияния фактора формы образца (размагничивающего фактора).

В случае, когда магнитное поле направлено в плоскости пленки, а электрический ток направлен параллельно ОТН, полевые зависимости МС практически совпадают (кривые 1 и 2 рис. 13, a). Магнитные моменты проводящих перколяционных Co кластеров в отсутствие внешнего магнитного поля ориентируются преимущественно вдоль ОЛН (перпендикулярно ОТН), образуя конус. При $H \parallel pl, H \parallel I, I \parallel ОТН$ в отсутствие внешнего поля магнитные моменты ориентируются вдоль оси конуса

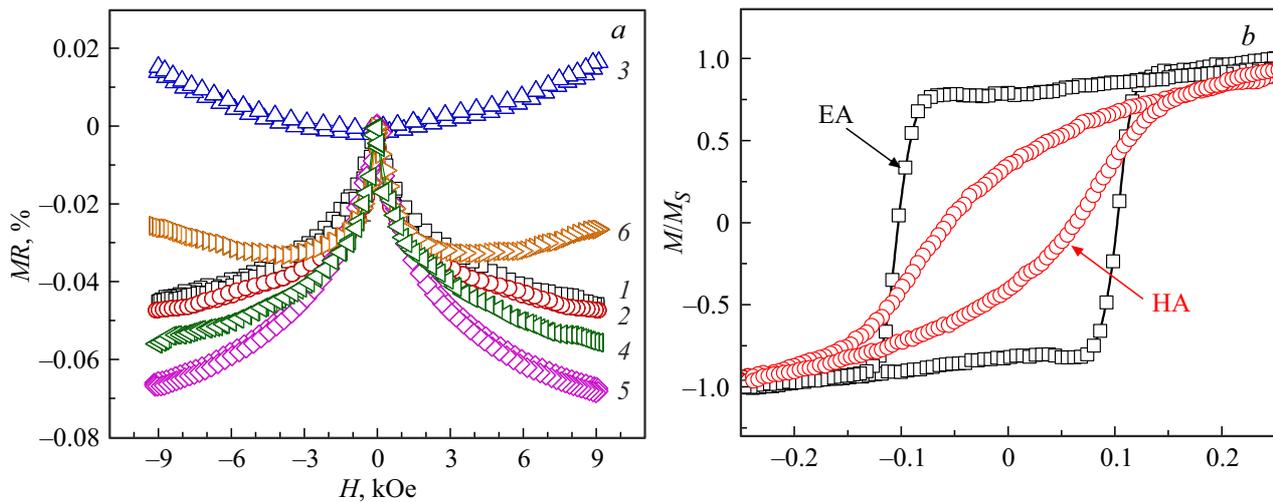


Рис. 13. Полевые зависимости магнитосопротивления (a): (1 — $H \parallel \text{pl}$, $H \parallel I$, $I \parallel \text{ОТН}$; 2 — $H \parallel \text{pl}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$; 3 — $H \perp \text{pl}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$; 4 — $H \parallel \text{pl}$, $H \parallel I$, $I \parallel \text{ОЛН}$; 5 — $H \parallel \text{pl}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОЛН}$; 6 — $H \perp \text{pl}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОЛН}$) и петли гистерезиса МОКЕ (b) (EA — магнитное поле направлено вдоль ОЛН (easy axis), HA — магнитное поле направлено вдоль ОТН (hard axis)), измеренные при комнатной температуре для многослойной тонкой пленки $(\text{Co}/\text{CoO})_{60}$ с эквивалентной толщиной прослойки Co 0.84 nm (вблизи порога протекания).

ОЛН, а приложение внешнего поля будет приводить к их ориентированию вдоль направления тока, что, согласно модели АМС в ферромагнетиках должно приводить к увеличению сопротивления (положительному МС), однако, как это видно из рис. 13, a (кривая 1) это не соответствует результатам эксперимента. Аналогичное противоречие наблюдается при условиях, когда $H \parallel \text{pl}$, $H \parallel I$, $I \parallel \text{ОЛН}$ (кривая 4 рис. 13, a), для которого приложение внешнего магнитного поля приводит к уменьшению угла раствора конуса, образованного магнитными моментами, уменьшая таким образом составляющую, перпендикулярную току, которое также должно приводить к положительному МС. Это нетипично для АМС, наблюдаемого в ферромагнитных материалах, в частности Co [22], что может быть объяснено как наличием составляющих ОЛН и ОТН перпендикулярных плоскости пленки, так и наличием дополнительных механизмов отрицательного МС, обсуждение которых приводилось ранее в работе [25] для многослойных систем $(\text{ZnO}/\text{C})_{25}$.

С другой стороны, для случаев, когда $H \parallel \text{pl}$, $H \perp I$ внешнее поле ориентирует магнитные моменты перпендикулярно направлению распространения тока (кривые 2 и 5 рис. 13, a), что приводит к появлению отрицательного МС, при этом изменение сопротивления максимально для случая, когда $I \parallel \text{ОЛН}$ (кривая 5 рис. 13, a). Это согласуется с моделью АМС ферромагнитных материалов, поскольку в случае $H \parallel \text{pl}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$ (кривая 2 рис. 13, a) при приложении внешнего поля уменьшается угол раствора конуса, образованного магнитными моментами, уменьшая таким образом составляющую, продольную току.

Для случая, когда магнитное поле было направлено перпендикулярно плоскости пленки ($H \perp \text{pl}$), а следо-

вательно и направлению тока ($H \perp I$) (кривые 3 и 6 рис. 13, a), МС содержало два вклада (положительный и отрицательный) когда электрический ток был направлен вдоль ОЛН (кривая 6 рис. 13, a) и было только положительным в случае, когда электрический ток был направлен вдоль ОТН (кривая 3 рис. 13, a).

При таких условиях измерения внешнее магнитное поле стремится ориентировать магнитные моменты перколяционных Co кластеров перпендикулярно плоскости пленки и направлению электрического тока, что при условии реализации АМС должно было бы приводить к уменьшению сопротивления и, следовательно, к отрицательному МС. Действительно для образца с $I \parallel \text{ОЛН}$ при условии $H \perp \text{pl}$, $H \perp I$ (кривая 6 рис. 13, a) в области слабых полей (не более 3 kOe) имеется отрицательная составляющая. Дальнейшее увеличение напряженности внешнего поля для этого образца приводит к появлению положительного вклада в МС.

Для образца с $I \parallel \text{ОТН}$ ($I \perp \text{ОЛН}$) в отсутствии внешнего поля магнитные моменты перколяционных Co кластеров расположены преимущественно перпендикулярно направлению протекания электрического тока в плоскости пленки. При увеличении внешнего поля и условиях $H \perp \text{pl}$, $H \perp I$ магнитные моменты будут ориентироваться перпендикулярно плоскости пленки, однако взаимная ориентация намагниченности образца и тока при этом не изменится. Поэтому для образца с $H \perp \text{pl}$, $H \perp I$, $I \parallel \text{ОТН}$ отрицательного вклада МС не наблюдается, а увеличение магнитного поля приводит к росту МС (кривая 3 рис. 13, a).

Заметим, что при комнатной температуре зависимость положительного МС близка к параболической (кривая 3 и 6 рис. 13, a), магнитного гистерезиса не наблюдает-

ся. Такие зависимости могут быть следствием наличия классического лоренцева магнитосопротивления, являющегося следствием искривления траектории носителей заряда (электронов) в магнитном поле.

Таким образом, магнитосопротивление тонких пленок (Co/CoO)₆₀ до порога протекания определяется механизмом спин-зависимого туннелирования между гранулами и кластерами металлического Co, а за порогом конкурирующими вкладами анизотропного магнитосопротивления перколяционной сетки ферромагнитного кобальта и лоренцева магнитосопротивления.

4. Заключение

Методом ионно-лучевого распыления керамической мишени CoO и металлического Co и последующего послойного осаждения в атмосфере аргона были получены тонкие пленки (Co/CoO)₆₀. Исследование структуры методами РФА и ПЭМ показало, что полученные пленки являются многослойными, при этом увеличение эквивалентной толщины прослойки Co до 0.8 nm приводит к переходу от островковых слоев Co в сплошной матрице CoO к многослойной структуре, состоящей из сплошных слоев металлического Co и непроводящего электрический ток CoO.

Экспериментально исследованы температурные зависимости удельного электрической проводимости тонких пленок (Co/CoO)₆₀. Установлено, что при значениях эквивалентной толщины прослойки Co до 0.8 nm (до порога протекания) в диапазоне температур 80–280 K происходит последовательная смена доминирующего механизма переноса от прыжкового механизма проводимости по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми с переменной длиной прыжка (80–140 K) к прыжкам по ближайшим соседям (140–280 K). Для тонких пленок (Co/CoO)₆₀, расположенных за порогом протекания проводимость определяется двумерными сетками металлических гранул и характеризуются положительным температурным коэффициентом.

Методами, основанными на измерении магнитооптического эффекта Керра, и с помощью вибрационного магнитометра были изучены магнитные свойства многослойной пленки (Co/CoO)₆₀. Результаты исследований показали наличие магнитной анизотропии в образцах вблизи порога протекания и за ним, при этом оси легкой и трудной намагниченности находятся в плоскости пленки и перпендикулярны друг другу.

Исследование зависимостей электросопротивления тонких пленок (Co/CoO)₆₀ от напряженности магнитного поля показало, что магнитосопротивление определяется механизмом спин-зависимого туннелирования между гранулами и кластерами металлического Co для образцов до порога протекания, а за порогом конкурирующими вкладами анизотропного магнитосопротивления перколяционной сетки ферромагнитного кобальта и лоренцева магнитосопротивления.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках государственного задания (проект № FZGM-2023-0006).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] К.И. Константианян, Г.А. Овсянников, А.В. Шадрин, В.А. Шмаков, А.М. Петржик, Ю.В. Кислинский, А.А. Климов. *ФТТ* **64**, 10, 1429 (2022). DOI: 10.21883/FTT.2022.10.53085.46HN [K.Y. Constantinian, G.A. Ovsyannikov, A.V. Shadrin, V.A. Shmakov, A.M. Petrzhik, Yu.V. Kislinkii, A.A. Klimov. *Phys. Solid State* **64**, 10, 1410 (2022). DOI: 10.21883/PSS.2022.10.54227.46HN]
- [2] A.V. Svalov, G.V. Kurlyandskaya, V.O. Vas'kovskiy, A. Larranaga, R. Domingues Della Pace, C.C. Plís Cid. *Journal of Non-Crystalline Solids*. **90**, 242 (2016). DOI: 10.1016/j.spmi.2015.12.030
- [3] И.Г. Важенина, С.В. Столяр, В.Ю. Яковчук, М.В. Рауцкий, Р.С. Исхаков. *ПЖТФ* **48**, 10, 8 (2022). DOI: 10.21883/PJTF.2022.10.52548.19135 [I.G. Vazhenina, S.V. Stolyar, V.Y. Yakovchuk, M.V. Rautsky, R.S. Iskhakov. *JETP Lett.* **48**, 5, 38 (2022). DOI: 10.21883/TPL.2022.05.53477.19135]
- [4] A.V. Sitnikov, V.A. Makagonov, Y.E. Kalinin, S.B. Kushchey, V.A. Foshin, N.N. Perova, E.A. Ganshina, A.B. Granovsky. *JMMM* **587**, 171154 (2023). DOI: 10.1016/j.jmmm.2023.171154.
- [5] А.Б. Ринкевич, М.А. Мильяев, Е.А. Кузнецов, Д.В. Перов, А.Ю. Павлова. *ЖТФ* **92**, 4, 608 (2022). DOI: 10.21883/JTF.2022.04.52249.298-21 [A.B. Rinkevich, M.A. Milyaev, E.A. Kuznetsov, D.V. Perov, A.Y. Pavlova. *JETP* **67**, 4, 515 (2022). DOI: 10.21883/TP.2022.04.53609.298-21]
- [6] S. Yoshida, H. Ono, S. Ando, F. Tsuda, T. Ito, Y. Shimada, M. Yamaguchi, K. Arai, S. Ohnuma T. Masumoto. *IEEE* **37**, 4, 2401 (2011). DOI: 10.1109/20.951185
- [7] P.M. Raj, P. Muthana, T.D. Xiao, L. Wan, D. Balaraman, I.R. Abothu, S. Bhattacharya, M. Swaminathan, R. Tummala. *IEEE* **272** (2005). DOI: 10.1109/ISAPM.2005.1432088
- [8] Р.Г. Митаров, С.Н. Каллаев, З.М. Омаров, К.Г. Абдулвахидов. *ФТТ* **65**, 2, 361 (2023). DOI: 10.21883/FTT.2023.02.54314.526 [R.G. Mitarov, S.N. Kallaev, Z.M. Omarov, K.G. Abdulvakhidov. *Phys. Solid State* **65**, 2, 355 (2023). DOI: 10.21883/PSS.2023.02.55423.526]
- [9] В.В. Коледов, Э.Т. Дильмиева, В.С. Калашников, А.П. Каманцев, А.В. Маширов, С.В. Фон Гратовски, В.Г. Шавров, Ю.С. Кошкидько, А.В. Кошелев, С.В. Таскаев, В. Сампат, И.И. Мусабилов, Ф.В. Чунг, Р.М. Гречешкин. *Журнал радиоэлектроники* **7**, 5 (2018). DOI: 10.30898/1684-1719.2018.7.8 [V.V. Koledov, E.T. Dilmieva, V.S. Kalashnikov, A.P. Kamantsev, A.V. Mashirov, S.V. Von Gratosky, V.G. Shavrov, Yu.S. Koshkidko, A.V. Koshelev, S.V. Taskaev, V. Sampat, I.I. Musabirov, F.V. Chung, R.M. Grechishkin. *Journal of radio electronics* **7** (2018). DOI: 10.30898/1684-1719.2018.7.8]

- [10] В.С. Калашников, В.В. Коледов, В.Г. Шавров, В.А. Андреев, А.В. Несоломенов, Д.С. Кучин, Р.Д. Карелин. Радиотехника и электроника **68**, 4, 338 (2023). DOI: 10.31857/S0033849423040046
- [11] В.В. Рыльков, С.Н. Николаев, В.А. Демин, А.В. Емельянов, А.В. Ситников, К.Э. Никируй, В.А. Леванов, М.Ю. Пресняков, А.Н. Талденков, А.Л. Васильев, К.Ю. Черноглазов, А.С. Веденеев, Ю.Е. Калинин, А.Б. Грановский, В.В. Тугушев, А.С. Бугаев. ЖЭТФ **153**, 3, 424 (2018). DOI: 10.7868/S0044451018030094 [V.V. Rylkov, S.N. Nikolaev, V.A. Demin, A.V. Yemelyanov, A.V. Sitnikov, K.E. Nikitui, V.A. Levanov, M.Y. Presnyakov, A.N. Taldenkov, A.L. Vasiliev, K.Y. Chernoglazov, A.S. Vedeneev, Yu.E. Kalinin, A.B. Granovsky, V.V. Tugushev, A.S. Bugaev. JETP **126**, 3, 353 (2018). DOI: 10.1134/S1063776118020152]
- [12] A.B. Drovosekov, N.M. Kreines, A.S. Barkalova, S.N. Nikolaev, V.V. Rylkov, A.V. Sitnikov. JMMM **495**, 165875 (2020). DOI: 10.1016/j.jmmm.2019.165875
- [13] L.N. Kotov, V.S. Vlasov, V.A. Ustyugov, V.K. Turkov, M.Yu. Dianov, Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, E.A. Golubev. IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. **175**, 012021 (2017). DOI: 10.1088/1757-899X/175/1/012021
- [14] J. van Lierop, K.-W. Lin, J.-Y. Guo, H. Ouyang, B.W. Southern. Phys. Rev. B **75**, 13, 134409 (2007). DOI: 10.1103/PhysRevB.75.134409
- [15] K. Lenz, S. Zander, W. Kuch. Phys. Rev. Lett. **98**, 237201 (2007). DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.237201
- [16] С.А. Гриднев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, О.В. Стогней. Нелинейные явления в нано- и микрогетерогенных системах. БИНОМ. Лаборатория знаний, М. (2012). 352 с.
- [17] Ф.Дж. Блатт, П.А. Шредер, К.Л. Фойлз, Д. Грейг. Термоэлектродвижущая сила металлов: пер. с англ. И.А. Магидсона; под ред Д.К. Белашенко. Металлургия, М. (1980). 247 с.
- [18] N.F. Mott, E.A. Davies. Electron Processes in Non-Crystalline Materials (Clarendon, Oxford, 1979).
- [19] О.В. Стогней, А.А. Гребенников. Вестник воронежского государственного технического университета **6**, 1, 173 (2010).
- [20] О.В. Стогней, А.В. Ситников, Ю.Е. Калинин, С.Ф. Авдеев, М.Н. Копытин. ФТТ **49**, 1, 158 (2007). [O.V. Stognei, A.V. Sitnikov, Y.E. Kalinin, S.F. Avdeev, M.N. Kopytin. Phys. Solid State **49**, 1, 164 (2007). DOI: 10.1134/S106378340701026X]
- [21] С.В. Вонсовский. Магнетизм. Наука, М. (1971). 1032 с.
- [22] M. El-Tahawy, L. Péter, L.F. Kiss, J. Gubicza, Zs. Czigány, G. Molnár, I. Bakonyi. JMMM **560**, 169660 (2022). DOI: 10.1016/j.jmmm.2022.169660
- [23] Н.С. Акулов. Ферромагнетизм. ОГИЗ, М. (1939). 188 с.
- [24] P. Ritzinger, K. Výborný. R. Soc. Open Sci. **10**, 230564 (2023). DOI: 10.1098/rsos.230564
- [25] E.A. Fadeev, E. Lahderanta, B.A. Aronzon, A.B. Mekhiya, Yu.E. Kalinin, V.A. Makagonov, S.Yu. Pankov, V.A. Foshin, A.B. Granovsky. JMMM **535**, 167963 (2021). DOI: 10.1016/j.jmmm.2021.167963

Редактор В.В. Емцев