

На правах рукописи



Еремин Евгений Владимирович

**ВЗАИМОСВЯЗЬ МАГНИТНОЙ И ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПОДСИСТЕМ
В ОБЪЕМНЫХ КРИСТАЛЛАХ И НАНОСТРУКТУРАХ
НА ОСНОВЕ 3d ИОНОВ Fe и Mn**

Специальность 01.04.11 – физика магнитных явлений

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Красноярск – 2017

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном научном учреждении «Федеральный исследовательский центр «Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук» обособленном подразделении «Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук» (ИФ СО РАН).

Научный консультант: доктор физико-математических наук, профессор, Волков Никита Валентинович.

Официальные оппоненты:

Муртазаев Акай Курбанович, член-корреспондент РАН, доктор физико-математических наук, профессор, директор Федерального государственного бюджетного учреждения науки "Институт физики им. Х.И. Амирханова" Дагестанского научного центра РАН, г. Махачкала.

Сухоруков Юрий Петрович, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник, зав. лабораторией магнитных полупроводников Федерального государственного бюджетного учреждения науки Институт физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук, г. Екатеринбург.

Волкова Ольга Сергеевна, доктор физико-математических наук, профессор кафедры низких температур Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова», г. Москва.

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского Казанского научного центра Российской академии наук, г. Казань.

Защита состоится «19» мая 2017 года в 14.30 часов на заседании диссертационного совета Д 003.075.01 при ИФ СО РАН по адресу: 660036, г. Красноярск, Академгородок, д. 50, стр. 38.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИФ СО РАН и на сайте института <http://kirensky.ru>.

Автореферат разослан «28» февраля 2017 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
доктор физ.-мат. наук



Втюрин А.Н.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования. Как известно, основа современной электроники – наличие электрического заряда у электрона. Но стремительно расширяющиеся потребности техники ставят новые задачи, которые решить средствами «классической электроники» уже не всегда удается. Работы и исследования ведутся в различных направлениях.

Одно из привлекательных направлений, которое бурно развивается, – спинтроника. В спинтронике, наряду с зарядом, спин электрона представляет собой активный элемент для хранения, обработки и передачи информации.

Наличие взаимодействующих друг с другом спиновой и зарядовой степеней свободы в твердых телах приводит к ряду интересных явлений, которые получили название спин-зависимые эффекты. Спин-зависимые эффекты не ограничиваются динамическими явлениями: даже статическое электрическое поле может влиять на спиновое состояние через спин-орбитальное взаимодействие, а статическое магнитное поле на электрическую подсистему.

Понятно, что сфера спинтроники весьма обширна, но есть все основания говорить, что на сегодняшний день в сфере внимания исследователей находятся, главным образом, несколько уникальных явлений.

Во-первых, это магнитоэлектрический (МЭ) эффект, наблюдаемый в мультиферроиках – класс кристаллических твердых тел, в которых сосуществуют хотя бы два из трех параметров порядка: магнитного, электрического или механического. МЭ эффект дает возможность с помощью электрического поля управлять магнитным состоянием твердого тела, и наоборот, осуществлять управление электрическими свойствами с помощью магнитного поля. До недавнего времени мультиферроики представляли интерес для сравнительно узкого круга специалистов, так как малые величины МЭ эффектов и низкие температуры, при которых они проявлялись, не позволяли говорить об их практическом применении. Наблюдающийся в последние годы всплеск активности в исследовании мультиферроиков связан с существенным прогрессом в понимании механизмов МЭ взаимодействия в них, а также с обнаружением

материалов, которые при комнатных температурах и в умеренных магнитных полях проявляют МЭ свойства, что породило ожидания конкретных практических приложений мультиферроиков в спиновой электронике и сенсорной технике. Однако, несмотря на большое количество теоретических и экспериментальных работ по данной тематике, механизмы МЭ эффекта до конца не поняты.

Во-вторых, это явление колоссального магнитосопротивления (КМС), которое наблюдается в марганцевых оксидах (манганитах). Манганиты также могут обладать сменой типа проводимости, которая сопровождается изменением магнитного состояния. Наличие в них сильно взаимодействующих спиновой и зарядовой подсистем определяет богатое разнообразие их свойств. К настоящему времени установлено, что причина сложного поведения этих систем кроется в конкуренции взаимодействий, имеющих сравнимые величины. При определенных уровнях легирования примесями энергии взаимодействий, отвечающие за тенденции образования той или иной фазы, становятся сравнимыми, и вопрос об основном состоянии системы оказывается весьма нетривиальным. Предполагается, например, что в данном случае основным может быть неоднородное состояние, типа состояния с фазовым расслоением. Тонкий энергетический баланс является также причиной высокой чувствительности свойств примесных манганитов к внешним воздействиям, таким как температура, внешнее магнитное поле, давление, транспортный ток и др. Несмотря на множество теоретических и экспериментальных работ, в настоящее время механизмы фазового расслоения до конца не выяснены.

В-третьих, это спин-зависимые явления в многослойных тонкопленочных структурах. В таких системах существенно изменяются свойства – возникают новые, так называемые размерные эффекты. Квантово-размерные эффекты обладают целой совокупностью уникальных свойств, весьма далеких от того, что можно наблюдать в обычных трехмерных системах. Такие структуры могут служить основой создания новых типов наноэлектронных приборов. При этом использование структур, содержащих магнитоактивные слои, значительно расширяет функциональные возможности низкоразмерных структур, поскольку в

этом случае, наряду с зарядом, спин электрона представляет собой активный элемент для хранения, обработки и передачи информации. В настоящее время физика низкоразмерных структур с магнитоактивными слоями интенсивно развивается, но устойчивая система взглядов и представлений в этой области исследований окончательно еще не сложилась. Такая ситуация настоятельно требует наращивания усилий в области технологии получения, экспериментального и теоретического исследования магнитных многослойных пленочных структур.

Цель и задачи работы. Целью диссертационной работы являлось экспериментальное исследование спин-зависимых явлений и взаимосвязи магнитной и электрической подсистем в объемных кристаллах и наноструктурах.

Задачами работы являлись:

- исследование магнитоэлектрического взаимодействия в новых редкоземельных оксиборатах со структурой хантита $\text{HoAl}_{3-x}\text{Ga}_x(\text{BO}_3)_4$ и $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$, а также поиск факторов, влияющих на величину магнитоэлектрического эффекта в этом семействе магнитоэлектриков;
- исследование эффекта колоссального магнитосопротивления в манганитах $(\text{La}_{1-y}\text{Eu}_y)_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$, изучение фазового расслоения в $(\text{La}_{0.4}\text{Eu}_{0.6})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ методом магнитного резонанса;
- исследование взаимосвязи магнитной и электрической подсистем в манганите $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$, определение обменной магнитной структуры этого соединения и объяснение поведения магнитных свойств как номинально чистого $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$, так и допированного примесями ионов Fe, Ga и Ge;
- исследование эффекта переключения токовых каналов в магнитной туннельной структуре на основе материалов манганитов с использованием геометрии «ток в плоскости структуры» в условиях комбинированного воздействия магнитного поля, оптического излучения и величины тока смещения;
- исследование спин-зависимых явлений в структуре $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{p-Si}$ и планарном устройстве $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{p-Si}$ на постоянном и переменном токах.

Научная новизна и защищаемые результаты:

1. Проведено исследование магнитных и магнитоэлектрических свойств новых оксиборатов со структурой хантита $\text{HoAl}_{3-x}\text{Ga}_x(\text{BO}_3)_4$ и $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$. Определены механизмы, влияющие на магнитоэлектрический эффект: во-первых, это изменение локальной симметрии редкоземельного иона вследствие изменения кристаллической структуры от $R\bar{3}2$ к $R\bar{3}21$; во-вторых, это локальные искажения анионного окружения редкоземельного иона, вызванные химическим давлением.
2. Впервые экспериментальным путем показано, что в редкоземельных оксиборатах со структурой хантита величина магнитоэлектрического эффекта зависит от фактора двойникования. В этом случае величина магнитоиндуцированной поляризации определяется как разность величин магнитоэлектрической поляризации подсистем правых и левых изомеров.
3. Проведено комплексное исследование магнитных, резонансных и транспортных свойств впервые синтезированных кристаллов манганитов состава $(\text{La}_{1-y}\text{Eu}_y)_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$. При изучении фазовой неоднородности в манганитах использован метод исследования частотно-полевых зависимостей спектров магнитного резонанса. Впервые обнаружено и экспериментально изучено влияние транспортного тока на спектр магнитного резонанса в монокристаллах манганита $(\text{La}_{1-y}\text{Eu}_y)_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$.
4. Впервые проведены исследования магнитных, транспортных, калорических и диэлектрических свойств манганита $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$. Исследованы магнитные свойства монокристаллов $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$, допированных ионами Fe, Ga и Ge.
5. В рамках модели косвенной связи определена обменная магнитная структура $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$. Объяснены магнитные особенности как номинально чистого $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$, так и допированного примесями ионов Fe, Ga и Ge.
6. Впервые проведено исследование магнитной туннельной структуры *ферромагнитный металл/диэлектрик/ферромагнитный металл* ($\text{LSMO}/\text{LSM}_{1-\delta}\text{O}/\text{MnSi}/\text{SiO}_2$) в геометрии ток в плоскости структуры. Показано, что особенности транспортных свойств определяются эффектом

переключения токовых каналов между слоями структуры. Эффект переключения управляется током смещения через структуру и магнитным полем. Установлено, что механизм влияния магнитного поля – зависимость сопротивления туннельных переходов под токовыми контактами от взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных электродов. Управляемое магнитным полем переключение токовых контактов определяет эффект положительного магнитосопротивления.

7. Впервые обнаружен и исследован фотоэлектрический эффект в магнитной туннельной структуре LSMO/LSM_{1-δ}O/MnSi/SiO₂. Эффект определяется генерацией электрон-дырочных пар при межзонном поглощении света в диэлектрическом слое туннельной структуры.
8. Обнаружен эффект переключения токовых каналов между слоями структуры Fe/SiO₂/p-Si. Установлено, что особенности транспортных свойств определяются переходом *метал/диэлектрик/полупроводник* с барьером Шоттки, который формируется на границе раздела SiO₂/p-Si.
9. Впервые для планарного устройства, представляющего собой два диода Шоттки, включенных навстречу друг другу, обнаружен магниторезистивный эффект, управляемый током смещения. Установлено, что эффект отрицательного магнитосопротивления наблюдается при переходе диода в режим инверсии.
10. Впервые обнаружен гигантский частотно-зависимый магниторезистивный эффект на переменном токе для гибридных структур. Установлено, что особенности транспортных свойств на переменном токе обусловлены процессами перезарядки поверхностных центров на границе раздела SiO₂/p-Si.

Достоверность результатов обусловлена тем, что представленные в работе экспериментальные исследования были проведены с использованием современных и апробированных методик на высокоточных приборах и установках. Результаты, представленные в диссертации, не противоречат экспериментальным и теоретическим данным других исследователей, опубликованным в открытой печати.

Научная и практическая значимость работы. Полученные в диссертации научные результаты в целом способствуют расширению существующих представлений о природе спин-зависимых явлений в объемных кристаллах и наноструктурах. Это может найти применение в получении новых многофункциональных материалов и структур, перспективных для создания устройств микроэлектроники, работающих на новых принципах.

Важно отметить, что в рамках данной работы в результате исследования переключения токовых каналов в туннельной структуре LSMO/LSM₁₋₈O/MnSi/SiO₂ в геометрии «ток в плоскости» был получен патент РФ «Туннельный магниторезистивный элемент».

Апробация результатов. Результаты, включенные в диссертацию, были представлены и обсуждены на: Международной Байкальской научной конференции «Магнитные материалы», Иркутск (2010, 2012, 2014); Euro-Asian Symposium «Trend in MAGnetism», EASTMag-2007 (Казань), - 2010 (Екатеринбург), - 2013 (Владивосток), - 2016 (Красноярск); Moscow International Symposium on Magnetism MISM – 2005, 2008, 2011, 2014 (Москва, МГУ); Международной конференции «Новые магнитные материалы микроэлектроники» - 2006, 2009 (Москва, МГУ); XX Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков (Красноярск); Международной конференции Европейского Материаловедческого Общества, «EMRS-Fall Meeting» - 2003 (Варшава, Польша); Международной конференции по магнетизму - 2003 (Рим, Италия); 34-м совещании по физике низких температур - 2006 (Сочи); на 8-м международном семинаре: “Radiation Damage Physics of Metal and Alloys” - 2009 (Снежинск); 11-ом международном симпозиуме «Порядок, Беспорядок и Свойства Оксидов» - 2008 (Сочи); 13-ом международном симпозиуме «Нанозифика и нанозлектроника» - 2009, 2012, 2013 (Нижний Новгород); совместном Европейском магнитном симпозиуме «JEMS2012» - 2012 (Парма, Италия).

Публикации. По теме диссертации опубликованы 53 научные работы, включая 25 трудов и тезисов докладов на конференциях, 26 статей в

рецензируемых научных изданиях, 1 патент Российской Федерации и 1 монография. Список основных публикаций приведен в конце автореферата.

Личный вклад. Задачи работы сформулированы автором совместно с научным консультантом д.ф.-м.н. Н.В. Волковым. Автором выполнены большая часть магнитных, резонансных, магнитоэлектрических, транспортных, диэлектрических измерений; остальные измерения были выполнены при непосредственном участии автора. Автором самостоятельно в рамках феноменологической модели проведен расчет магнитного поведения ферроборатов $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$. Самостоятельно проведен расчет обменной магнитной структуры $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$. Идеи, представленные в защищаемых положениях, являются результатом дискуссий автора, научным консультантом и коллегами.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, семи глав, заключения, списка опубликованных работ и списка цитируемой литературы. В пяти главах изложены оригинальные результаты. Работа изложена на 262 страницах, включая 104 рисунка, 8 таблиц и список литературы из 221 наименования.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертационного исследования, сформулированы цели и задачи работы, отмечается научная новизна и практическая ценность полученных результатов, изложены основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава посвящена литературному обзору. Глава обобщает известные в литературе работы по спин-зависимым эффектам. Для удобства предложено разделение систем, в которых в явном виде проявляется взаимосвязь спиновой и зарядовой подсистем, на четыре основных группы: 1) системы с локализованными зарядами и локализованными спинами, в которых отсутствует перенос и заряда, и спина (магнитоэлектрики); 2) системы, в которых магнитный порядок определяется локализованными магнитными (спиновыми) моментами, но есть

свободные носители заряда (системы с магнитным фазовым расслоением);

3) магнитные системы со свободными носителями заряда, в которых спиновые степени свободы свободных электронов или дырок оказывают влияние на транспортные свойства (многослойные магнитные системы, такие как спин-вентильные, магнитные туннельные структуры и целый ряд гибридных структур);

4) системы, в которых реализуется чисто спиновый ток (материалы и структуры, в которых реализуется спиновый эффект Холла). В конце сделана постановка задачи, дано обоснование выбора объектов исследования.

Вторая глава посвящена описанию экспериментальных установок, используемых в данной работе, технология получения и приготовления образцов и структур.

Для исследования магнитных, калорических и транспортных свойств исследуемых объектов в данной работе использовалась серийно выпускаемая установка по исследованию физических свойств твердых тел (PPMS-9, Quantum Design). Данная установка позволяет проводить измерения в диапазоне температур 2-400 К и магнитных полях до 9 Тл.

Для исследования магнитоэлектрических свойств мультиферроиков на базе PPMS-9 была создана методика измерения прямого магнитоэлектрического эффекта. Измерения поляризации проводились статическим методом путем измерения электрического заряда с помощью электрометра в режиме непрерывной записи показания величины электрического заряда с поверхностей измеряемого образца в режиме изменения температуры или магнитного поля.

Процессы электронного фазового расслоения в манганитах были исследованы методом магнитного резонанса. В работе использовался спектрометр со сменными резонаторами высокой добротности ($Q \sim 3000$ при температуре жидкого гелия), позволяющие работать на частотах $\nu = 9, 26, 35$ ГГц. А также спектрометр магнитного резонанса с импульсным магнитным полем, имеющий диапазон рабочих полей до 100 кЭ, диапазон частот 25-140 ГГц и диапазон рабочих температур 4.2-300 К.

При исследовании многослойных структур основными используемыми методами являлись: исследование транспортных и магнитотранспортных свойств, а также исследование отклика систем на комбинированное воздействие транспортного тока, магнитного поля и оптического излучения. Для этого была создана полностью автоматизированная установка для прецизионных исследований, основные характеристики которой: диапазон токов ± 1.05 А, диапазон измеряемых напряжений ± 200 В, диапазон температур 4.2-300 К, диапазон магнитных полей ± 12 кЭ; также установка позволяет проводить исследование транспортных свойств в условиях оптического облучения.

Для исследования импеданса и магнитоимпеданса была подготовлена еще одна установка, которая базируется на двух анализаторах импеданса (LCR – метрах), что позволяет проводить измерения в диапазоне частот от 20 Гц до 3 ГГц, в температурном диапазоне 4.2-300 К и магнитных полях до 12 кЭ.

Кроме того, использовался широкий набор вспомогательных экспериментальных методик, которые помогали характеризовать структуру и микроструктуру исследуемых образцов, а также определять их основные свойства.

Монокристаллы редкоземельных оксидов со структурой хантита выращивались группой технологов под руководством Л.Н. Безматерных (ИФ СО РАН) в две стадии. Сначала в режиме спонтанного зарождения выращивались кристаллы размером ~ 1 мм. На следующей стадии кристаллы выращивались на затравках с понижением температуры, так чтобы скорость роста не превышала 1 мм/день. В конце роста кристаллы охлаждались до комнатной температуры со скоростью не более $100^\circ\text{C}/\text{ч}$. В результате получались объемные кристаллы с размерами $\sim 10 \times 10 \times 10$ мм.

Монокристаллы свинецсодержащих манганитов были синтезированы методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве К.А. Саблиной (ИФ СО РАН). Выбор ионов Pb диктовался особенностью технологии синтеза, которая заключалась в том, что PbO и PbF₂ использовались в качестве растворителя и в тоже время обеспечивали содержание примеси Pb в кристаллах. Кристаллы

выращивались в платиновом тигле. Выбранный технологический режим обеспечивал получение кристаллов со средним размером $3 \times 3 \times 3$ мм. Рентгеноструктурный анализ полученных монокристаллов подтвердил состав и показал, что монокристаллические образцы всех составов представляют собой однофазные соединения. Образцы для исследований изготавливались в форме пластинок размерами $3 \times 2 \times 0.1$ мм, поверхности пластинок полировались.

Магнитная туннельная структура типа *ферромагнитный металл/диэлектрик/ферромагнитный металл* была предоставлена для исследований коллегами из Чангвонского национального университета (Южная Корея). Туннельная структура была приготовлена методом импульсного лазерного напыления на подложке SiO_2 (001) с использованием $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) и Si мишеней. В результате выбранного технологического процесса состав структуры оказывался следующим: нижний слой – моносилицид марганца (MnSi) с $T_c = 30$ К, имеющий металлический тип проводимости; верхний слой – пленка манганита LSMO с $T_c = 320$ К; на границе раздела – обедненный слой манганита с недостатком марганца $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Mn}_{1-\delta}\text{O}_3$ ($\text{LSM}_{1-\delta}\text{O}$), являющийся немагнитным диэлектриком. Такую структуру ниже 30 К можно представить, как два ферромагнитных металла, разделенные диэлектриком, т.е. туннельную магнитную структуру.

Гибридные структуры Fe/SiO₂/p-Si были получены С.Н. Варнаковым (ИФ СО РАН). В качестве полупроводника выступала пластина кремния, легированная бором и, следовательно, обладающая проводимостью p-типа. Для синтеза структуры использовалась полированная грань (100). На поверхности пластины был получен диэлектрический слой SiO_2 толщиной 2 нм. Сверху было нанесено железо методом термического испарения в сверхвысоком вакууме ($6.5 \cdot 10^{-8}$ Па) при комнатной температуре. Также на базе этой структуры было подготовлено простейшее планарное устройство, представляющее собой два диода *металл/диэлектрик, полупроводник*, включенных навстречу друг другу.

Третья глава посвящена изложению оригинальных результатов по исследованию магнитоэлектрического (МЭ) эффекта в редкоземельных

оксиборатах со структурой хантита $R\text{Me}_3(\text{BO}_3)_4$. Эти соединения являются хорошими модельными объектами для поиска механизмов, ответственных за сильное МЭ взаимодействие в магнитных диэлектриках.

В качестве первого объекта исследования был выбран $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$. Интерес к $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ обусловлен тем, что среди всех однокомпонентных ферроборатов $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$ в нем был обнаружен наибольший МЭ эффект [1], а также гигантский магнитодиэлектрический эффект [2]. Так как ферробораты $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$ содержат две магнитные подсистемы (4-f и 3-d ионов), то полезным видится подход, когда редкоземельная подсистема постепенно исключается путем замещения магнитных ионов немагнитными.

Исследование магнитных свойств в $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ показало, что при температурах $T < T_N \approx 35$ К поведение намагниченности для всех составов качественно не отличается от поведения в $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [1] (рис. 1). Из рисунка 1 видно, что по мере роста концентрации ионов La^{3+} магнитный момент в пересчете на формульную единицу увеличивается. Причем, как видно, увеличение не связано с выходом момента из плоскости, поскольку рост намагниченности с ростом концентрации ионов La^{3+} имеет место в обоих направлениях.

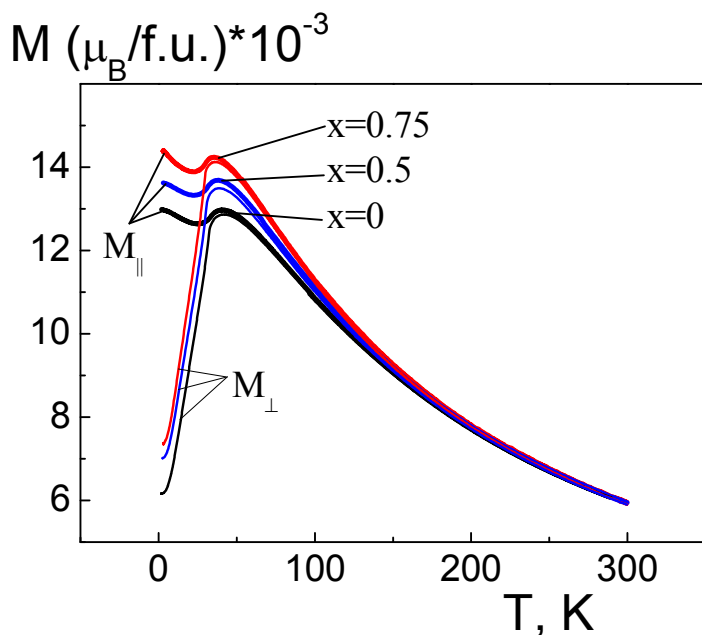


Рисунок 1. Температурные зависимости намагниченности для $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$, измеренные в магнитном поле 1 кЭ, в геометрии $H \parallel c$ и $H \perp c$.

Объяснение наблюдаемых магнитных свойств кристаллов $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ было дано в рамках феноменологической модели. Показано, что поведение

магнитных свойств обусловлено конкуренцией обменных $d-d$ и $d-f$ взаимодействий.

В работе [3] на основе симметричного анализа было показано, что величина МЭ поляризации в редкоземельных ферроборатах со структурой хантита должна уменьшаться линейно по мере уменьшения концентрации редкоземельного иона. Однако экспериментальные исследования показали, что величина индуцированной магнитным полем электрической поляризации в $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ уменьшается непропорционально увеличению x (рис. 2). Это можно объяснить тем, что присутствие ионов La^{3+} приводит к возникновению факторов, которые ведут к росту МЭ эффекта. Наиболее вероятным фактором, скорее всего, является наличие локальных искажений, приводящих к изменению энергетической структуры иона Sm^{3+} .

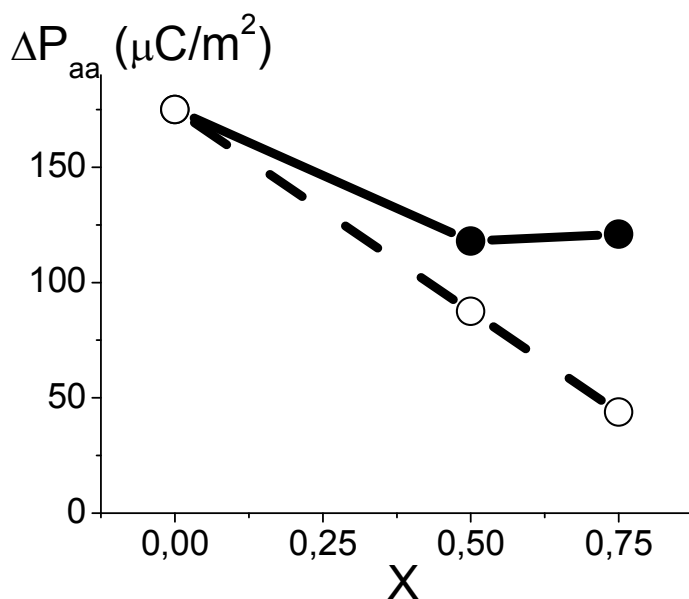


Рисунок 2. Величина ΔP_{aa} магнитоэлектрической поляризации $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$, полученная при $T = 4.2$ К и $H = 90$ кЭ, в зависимости от x . Пунктиром обозначено ожидаемое значение ΔP_{aa} из расчета того, что величина магнитоэлектрического эффекта прямо пропорциональна только концентрации ионов Sm^{3+} .

В качестве второго объекта исследования был выбран $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$. Выбор обусловлен обнаружением в алюмоборатах $\text{RAl}_3(\text{BO}_3)_4$ гигантского значения МЭ поляризации [4-6], которая на порядок превышает таковую в ферроборатах. В связи с этим возникает задача по исследованию других парамагнитных оксиборатов со структурой хантита, например, галлоборатов $\text{RGa}_3(\text{BO}_3)_4$.

Вид кривых полевых зависимостей поперечной $\Delta P_{ab}(H_b)$ и продольной $\Delta P_{aa}(H_a)$ МЭ поляризации (рис. 3) оказался типичен для наблюдавшихся ранее

зависимостей в парамагнитных хантатах, в частности в $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ [6]. Но, по сравнению с последним, величина эффекта оказалась примерно в 5 раз меньше.

Совокупность термодинамических данных $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ [7] и $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ [6] демонстрируют достаточно близкие магнитные свойства, но при этом имеют заметные отличия в магнитной анизотропии и вкладе магнитной подсистемы в теплоемкость, что является эффектом изменившегося кристаллического поля и, как следствие, изменившейся структуры основного мультиплета иона Ho^{3+} .

Расчеты, проведенные в рамках модели кристаллического поля [7], показали не только количественное, но и качественное различие энергетической структуры иона Ho^{3+} в рассматриваемых кристаллических матрицах. К примеру, отличается порядок следования дублетов и синглетов – для $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ в нижней части мультиплета находятся дублет – синглет – дублет, а не дублет – дублет – синглет, как в $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$.

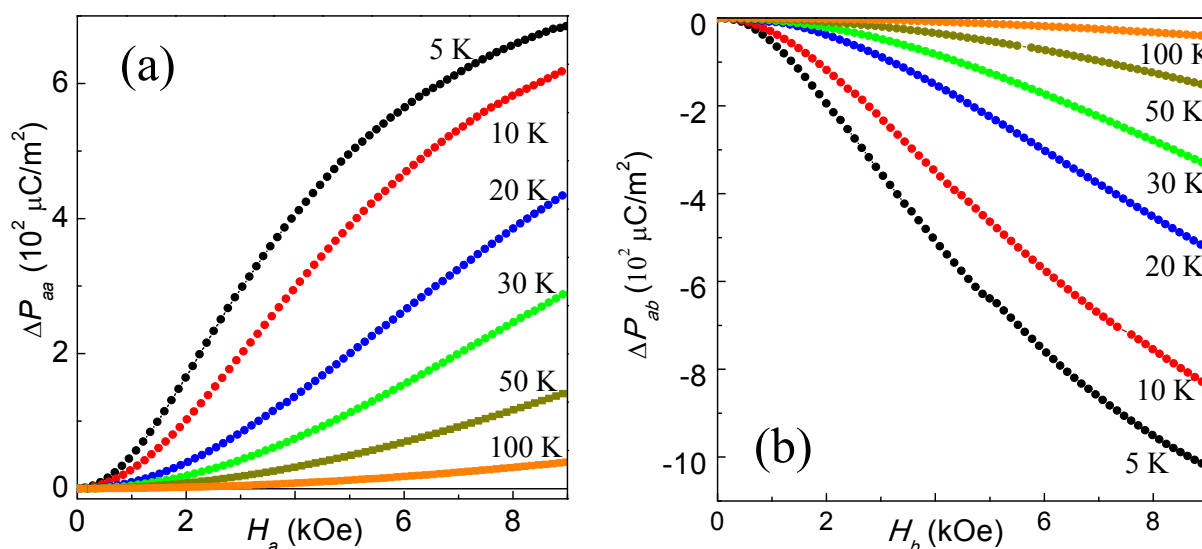


Рисунок 3. Экспериментальные полевые зависимости продольной (а) и поперечной (б) магнитоэлектрической поляризации $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ при указанных температурах.

Таким образом, различие термодинамических свойств и величины МЭ эффекта в $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ и $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ обусловлены разной энергетической структурой иона Ho^{3+} в этих соединениях, что можно объяснить следующим образом. Как известно, некоторые редкоземельные ферробораты со структурой хантита имеют структурный фазовый переход $R32 \rightarrow P3_121$ (с изменением

симметрии локального окружения редкоземельного иона в поле лигандов от D_3 к C_2), температура которого линейно возрастает с уменьшением ионного радиуса редкоземельного иона [8]. Если сделать предположение, что переход $R32 \rightarrow P3_121$ зависит только от отношения ионных радиусов большого и малого катионов, и это правило распространяется на все оксибораты со структурой хантита, то структурный переход для галлобората $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ должен быть примерно в районе $T_S = 225$ К. В подтверждение этого предполагаемого перехода можно указать на диэлектрическую аномалию, которая имеет место на температурной зависимости $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ при $T_S = 247$ К.

В итоге можно предположить, что причиной отличия величины МЭ эффекта для $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ и $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ является различная симметрия кристаллического поля иона Ho^{3+} , которое формирует его энергетическую структуру в анионном окружении. Что может быть вызвано структурным переходом в $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ из фазы $R32$ в фазу $P3_121$.

Еще одним фактором, влияющим на величину МЭ эффекта, является следующее. Как известно, кристаллическая структура тригональных редкоземельных оксиборатов со структурой хантита такова, что кислородные октаэдры, в которых находятся ионы Fe^{3+} (Al^{3+} , Ga^{3+} , Sc^{3+}), образуют спиральную цепочку вдоль оси третьего порядка. Причем закручивание спирали, в зависимости от кристалла, может быть как в правую сторону, так и в левую или же быть смешанным (рацемическое двойникование или хиральность). Другими словами, в хантитах возможно сосуществование областей или доменов с правыми и левыми спиралями, что было подтверждено экспериментально [9].

Для проверки гипотезы того, что «правые» и «левые» домены дают противоположный вклад в МЭ эффект, последний был исследован в твердом растворе $\text{HoAl}_{3-x}\text{Ga}_x(\text{BO}_3)_4$. Выбор такого состава обусловлен тем, что ранее были определены степень двойникования в $\text{HoAl}(\text{BO}_3)_4$ и $\text{HoGa}(\text{BO}_3)_4$, которая является 100% левой и 100% правой, соответственно.

На рисунке 4 показаны зависимости продольной P_{aa} и поперечной P_{ab} МЭ поляризации и степени двойникования F , определенной при $T = 300$ К. Если

принять тот факт, что поляризация имеет противоположные знаки для левых и правых двойников, то в этом случае измеряемая величина поляризации определяется нескомпенсированной долей левых и правых двойников, что и наблюдается в графиках (рис. 4).

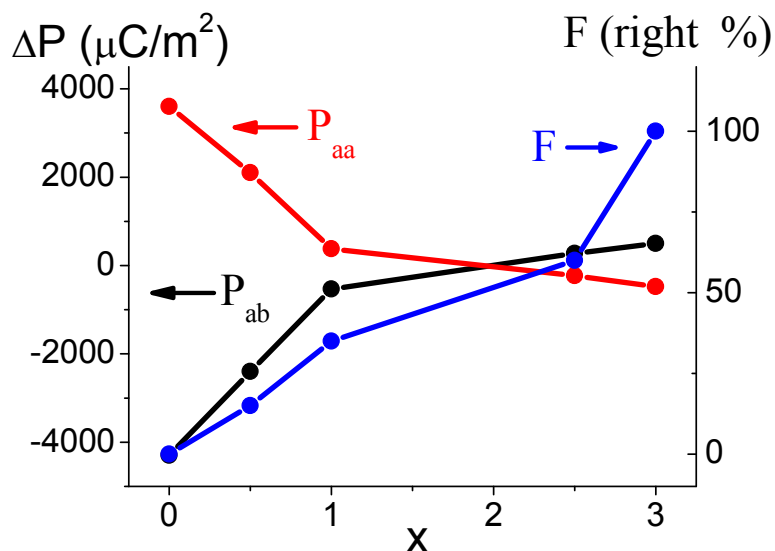


Рисунок 4. Зависимости продольной P_{aa} и поперечной P_{ab} магнитоэлектрической поляризации $\text{HoAl}_{3-x}\text{Ga}_x(\text{BO}_3)_4$ от x при $T=5$ К и $H=70$ кЭ и фактора двойникования F .

Четвертая глава посвящена изложению оригинальных результатов по исследованию кристаллов манганитов $(\text{La}_{1-y}\text{Eu}_y)_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ ($y = 0, 0.2, 0.4$ и 0.6). В настоящее время считается, что уникальные свойства манганитов обусловлены сосуществованием магнитных фаз, обладающих различным типом проводимости и магнитным упорядочением (фазовое расслоение).

Прежде всего, для кристаллов $(\text{La}_{1-y}\text{Eu}_y)_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ были проведены исследования температурных зависимостей намагниченности. Установлено, что с увеличением содержания ионов европия значение эффективного магнитного момента, приходящегося на формульную единицу μ_{eff} , увеличивается, а значение температуры Кюри T_c — уменьшается. Увеличение магнитного момента можно объяснить влиянием магнетизма примесных ионов Eu^{3+} , возникающего за счет примешивания к основному мультиплету 7F_0 более высоколежащих мультиплетов [10]. А уменьшение температуры Кюри, скорее всего, происходит в результате изменения геометрии обменных взаимодействий, вызванного локальными искажениями.

Температурные кривые намагниченности были получены в разных режимах, как при охлаждении в поле $H = 50$ Э (FC), так и при охлаждении без

поля (ZFC). С увеличением концентрации ионов Eu кривые намагниченности демонстрируют все более сложное поведение, что указывает на неоднородность магнитного состояния, в частности на то, что реализуется состояние, подобное спин-стекольному.

Из температурных зависимостей удельного электросопротивления $\rho(T)$ видно, что при замещении ионов La ионами Eu транспортные свойства меняются весьма значительно (рис. 5). Так, величина магнитосопротивления $(\rho(H)-\rho(0))/\rho_0$ растет с увеличением y и достигает своего максимума в 96% при $y = 0.6$ в магнитном поле $H = 50$ кЭ.

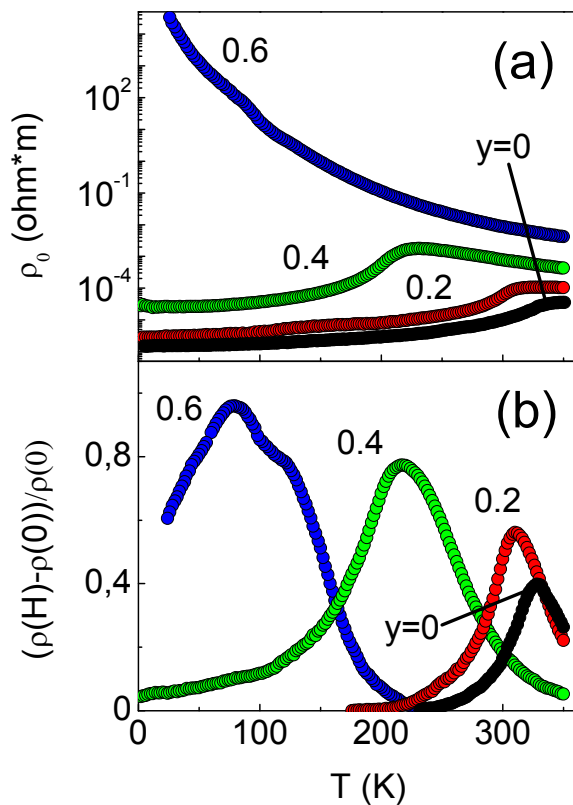


Рисунок 5. Температурные зависимости удельного электросопротивления (a) и магнитосопротивления (b) монокристаллов $(La_{1-y}Eu_y)_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$.

Поведение магнитных и транспортных свойств манганита $(La_{0.4}Eu_{0.6})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ хорошо описывается в рамках модели, предполагающей наличие двух сосуществующих магнитных фаз, которые также отличаются электрическими свойствами (рис. 6). При высокой температуре образец находится в однофазном парамагнитном состоянии с поляронным типом проводимости (PMР). С понижением температуры при $T > T^*$ в парамагнитной фазе появляется проводящая ферромагнитная фаза (FMC). Эта фаза представляет собой

совокупность замкнутых областей, которые увеличивают свой объем при понижении температуры. Затем при достижении температуры Кюри T_C парамагнитная фаза трансформируется в ферромагнитную диэлектрическую фазу (FMI).

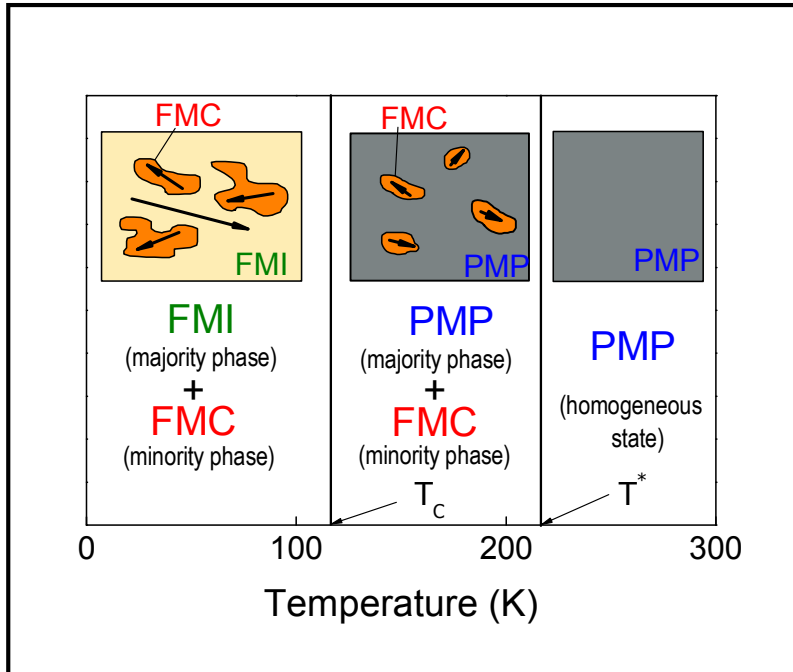


Рисунок 6. Схематическая температурная фазовая диаграмма $(\text{La}_{0.4}\text{Eu}_{0.6})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ системы. PMP – парамагнитная фаза, FMC и FMI – ферромагнитная проводящая и диэлектрическая фазы, соответственно.

Для доказательства предлагаемой модели двухфазного состояния был выбран метод магнитного резонанса, который позволяет наблюдать сосуществование областей с различным типом магнитного упорядочения.

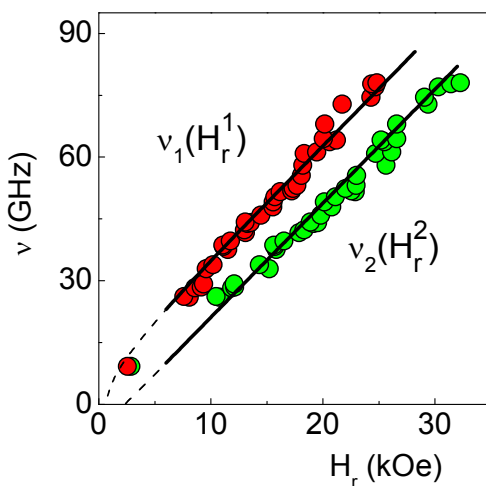


Рисунок 7. Частотно-полевые зависимости для двух линий поглощения магнитного резонанса $(\text{La}_{0.4}\text{Eu}_{0.6})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$. Символы — эксперимент, линии — модельный расчет.

В спектре магнитного резонанса при понижении температуры уверенно регистрируются две линии поглощения, начиная с $T \sim 220$ К, что близко к температуре, где появляются аномалии в поведении транспортных свойств

кристалла. Две линии соответствуют магниторезонансному поглощению в двух различных фазах, сосуществующих в объеме образца, это же подтверждают измерения частотно-полевых зависимостей (рис. 7).

Исходя из предложенной модели двухфазного состояния, было показано, что резонансные условия для обеих фаз в линейном приближении даются следующими соотношениями:

$$\left(\frac{\nu_1}{\gamma}\right)^2 \approx \left(H_r^1 + (1+x)J_{eff}M_2\right)\left(H_r^1 + (1+x)J_{eff}M_2 + 4\pi M_1\right),$$

$$\frac{\nu_2}{\gamma} \approx H_r^2 + \left(\frac{1+x}{x}\right)J_{eff}M_1,$$

где γ – гиромагнитное отношение; H_r^1 и H_r^2 – резонансные поля линий поглощения FMI и FMC фаз, соответственно; J_{eff} – константа обменного взаимодействия между фазами, которая была принята отрицательной, что соответствует АФМ обменной связи между сосуществующими фазами; параметр x – соотношение между фазами, который при вычислениях был заменен отношением интенсивностей резонансных линий поглощения A_2/A_1 . Сравнение экспериментальных данных с вычислениями показывает, что предложенная модель качественно подтверждает предположения, основанные на транспортных, магнитных и магниторезонансных измерениях (рисунок 7).

В пятой главе приводятся результаты исследования взаимосвязи магнитной и электрической подсистем в манганите $Pb_3Mn_7O_{15}$. Интерес к этому соединению обусловлен тем, что поскольку уникальные свойства манганитов обусловлены наличием ионов марганца различной валентности Mn^{3+}/Mn^{4+} , то возникает вопрос об исследовании физических свойств в системах, где изначально содержатся ионы марганца переменной валентности.

При комнатной температуре это соединение имеет ромбическую структуру с пространственной группой $Rnma$ [11] и имеет структуру зензенита. Элементарная ячейка содержит 8 формульных единиц, ионы Mn находятся внутри кислородных октаэдров в 9-ти неэквивалентных позициях. Соединение имеет

ярко выраженную слоистую структуру. Слои кислородных октаэдров, находящиеся в плоскости b - c , соединены «мостиками», содержащими два таких октаэдра.

На рисунке 8 приведены температурные зависимости намагниченности, полученные при охлаждении в нулевом магнитном поле (ZFC) и в постоянном поле (FC). Измерения приводились вдоль оси a и оси b . На температурной зависимости виден широкий, ярко выраженный максимум при $T_1 \approx 160$ К, что указывает на начало кооперативного эффекта в магнитной подсистеме кристалла. Скорее всего, здесь имеет место частичное упорядочение кластерного типа. Затем, при понижении температуры ниже $T_2 = 72$ К в системе возникает дальний магнитный порядок. И при дальнейшем охлаждении при температурах порядка 45 К появляется разница между намагниченностью, измеренной в условиях ZFC и FC. А при $T_3 = 16$ К, по-видимому, имеет место спин-переориентационный переход.

Изотермы кривых намагниченности для направлений $H||a$ и $H||b$ подтверждают, что ниже T_2 возникает спонтанный слабоферромагнитный момент, лежащий в плоскости b - c .

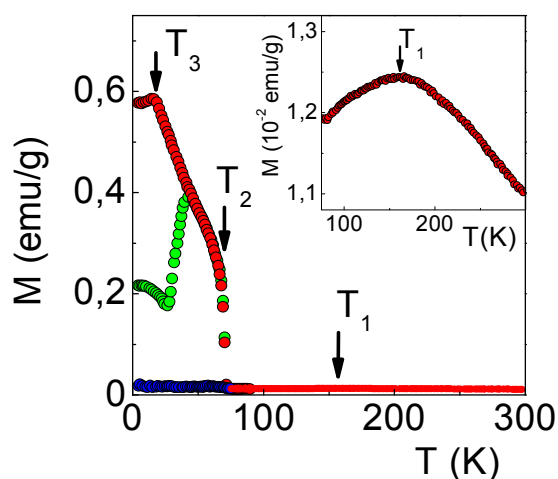


Рисунок 8. Температурная зависимость намагниченности $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$, полученная в поле 500 Э, для направлений $H||a$ (синие значки) и $H||b$ – при охлаждении в нулевом магнитном поле (зеленые значки) и при охлаждении в магнитном поле 500 Э (красные значки); на вставке та же самая кривая в увеличенном масштабе.

Важно отметить еще несколько моментов: определенная из обратной зависимости восприимчивости парамагнитная температура Кюри дает неожиданно высокую температуру $\theta = -520$ К, по сравнению с температурой Нееля $T_N = 72$ К, что указывает на наличие сильных геометрических фрустрации в

обменной магнитной структуре. Наличие сильных обменных взаимодействий также подтверждается тем фактом, что отклонение магнитной восприимчивости от поведения Кюри-Вейса начинается при достаточно высоких температурах $T^* \sim 250$ К.

Исследование транспортных свойств $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ показало, что температурные зависимости удельной электрической проводимости $\rho(T)$ для направлений вдоль оси a (перпендикулярно слоистой структуре) и оси c демонстрируют полупроводниковый тип проводимости. Анализ зависимости $\rho(T)$ показывает, что электрическая проводимость в $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ при $T > 250$ К описывается в рамках модели перескоков поляронов малого радиуса по ближайшим соседям, а при $T < 250$ К в рамках модели перескоков поляронов малого радиуса с переменной длиной прыжка. Скорее всего, что в районе температуры 250 К происходит полное или частичное зарядовое упорядочение, о чем также свидетельствуют, в частности, особенности в поведении удельной теплоемкости [12] и параметра решетки [13]. Стоит обратить внимание, что при этой же температуре имеет место отклонение от закона Кюри-Вейса, что говорит о возникновении в системе ближнего магнитного порядка, который, возможно, связан с установлением зарядового упорядочения.

Еще одной областью, в которой в явном виде проявляется корреляция электрической и магнитной подсистем, является диапазон температур в районе 160 К. Температурные зависимости комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$, полученные на различных частотах, представлены на рисунке 9. В районе температур 110–180 К видны резко выраженные аномалии. На зависимостях реальной части $\varepsilon'(T)$ аномалии имеют вид ступеньки при повышении температуры, которая совпадает и с пиком диэлектрических потерь ε'' . Наблюдаемые аномалии диэлектрической проницаемости заметно смещаются в область высоких температур по мере увеличения частоты. Это поведение показывает, что релаксационные процессы исследуемой системы могут быть объяснены, например, механизмами перескока ионов или прыжками локализованных электронов с характерным временем релаксации. Но более

правильно здесь говорить о подвижности поляронов в ионном кристалле, которая отвечает за проводимость и также может вызвать диэлектрическую дисперсию. Переменное электрическое поле может индуцировать перескоки между эквивалентными узлами решетки. Эти перескоки соответствуют переориентации электрических диполей, которые дают релаксационную частотную зависимость полной диэлектрической проницаемости дебаевского типа. Заметим, что сама химическая формула $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$, предполагающая смешанную валентность ($3+/4+$) ионов Mn, позволяет рассматривать электронные перескоки между Mn^{3+} и Mn^{4+} как ключевой механизм и диэлектрической дисперсии, и электрической проводимости в кристалле. Кроме того, зарядовое упорядочение ионов марганца смешанной валентности должно также влиять не только на электрическую подсистему, но и на магнитную. Именно поэтому широкий пик на магнитной восприимчивости в районе 160 К разумно связать с частичным упорядочением кластерного типа.

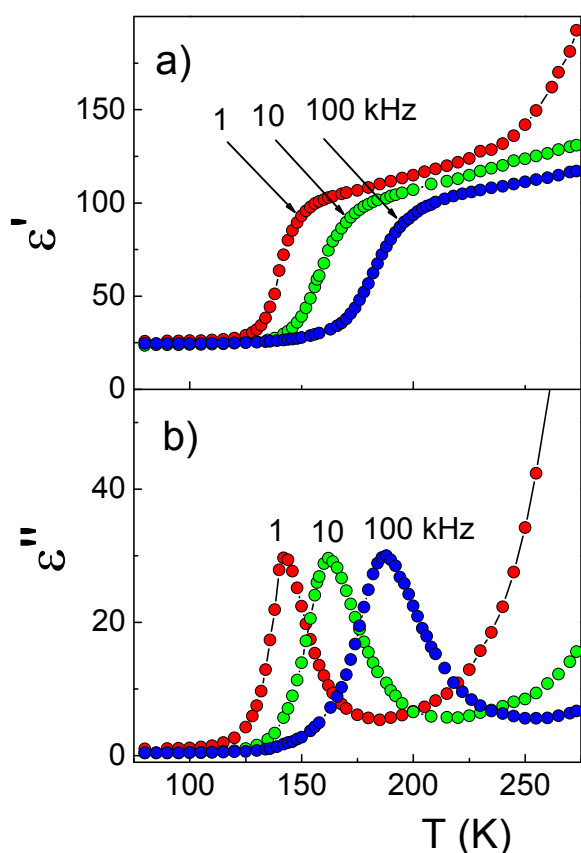


Рисунок 9. Температурная зависимость реальной ϵ' (a) и мнимой ϵ'' (b) частей диэлектрической проницаемости $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$, полученной при измерении вдоль оси a на разных частотах.

Анализ магнитной обменной структуры $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ был проведен в рамках модели косвенной связи [14-16]. Данная модель позволила качественно объяснить

изменение магнитных свойств монокристалла $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ при его допировании ионами Ga^{3+} , Ge^{4+} и Fe^{3+} .

В шестой главе представлены результаты исследования эффекта управляемого переключения токовых контактов в туннельной магнитной структуре $\text{LSMO}/\text{LSM}_{1-\delta}\text{O}/\text{MnSi}$ с использованием геометрии ток в плоскости структуры (рис. 10а). На рисунке 10б приведены ВАХ структуры при разных температурах в отсутствии внешнего магнитного поля. При некотором критическом токе I_{th} наблюдается резкая нелинейность ВАХ. Такое поведение можно объяснить следующим образом. Поскольку токовые контакты нанесены на верхний проводящий слой (FM1), а нижний проводящий слой (FM2) отделен потенциальным барьером (Insulator), естественно предположить, что при малых токах $I < I_{th}$ ток будет течь по верхнему электроду, и все транспортные свойства будут определяться свойствами верхней пленки. Увеличение тока I приводит к возникновению напряжения смещения V_T ($V_T \ll V$) на туннельных переходах под токовыми контактами и связанного с ним увеличения туннельного тока I_T через потенциальный барьер, разделяющий верхний и нижний слои структуры. В результате при $I > I_{th}$ ток начинает преимущественно течь по нижнему слою (MnSi), сопротивление которого R_s мало по сравнению с сопротивлением пленки манганита R_M .

Исследование ВАХ структуры в магнитном поле H показало, что при $T > 30$ К влияние поля наблюдается только для токов $I < I_{th}$. Действие магнитного поля в этой области токов полностью определяется магниторезистивными свойствами пленки манганита. При увеличении тока смещения через структуру, когда он становится больше величины I_{th} ($I > I_{th}$), происходит переключение токового канала, и ток начинает преимущественно течь по нижнему слою структуры. Поскольку MnSi не обладает заметной величиной магнитосопротивления, а ток через туннельные переходы при $T > 30$ К не зависит от магнитного поля H , то магниторезистивный эффект при $I > I_{th}$ и температурах выше 30 К не наблюдается. При $T < 30$ К в слое MnSi возникает ферромагнитный

порядок, и структура представляет собой уже магнитный туннельный переход, и ток через такой переход будет зависеть от взаимной ориентации намагниченностей \mathbf{M}_M и \mathbf{M}_S в слоях LSMO и MnSi, соответственно. Рисунок 11a демонстрирует, что ниже 30 К эффект отрицательного магнитосопротивления для $I < I_{th}$ сохраняется, но дополнительно обнаруживается сильное влияние H и на участке ВАХ, соответствующему $I > I_{th}$.

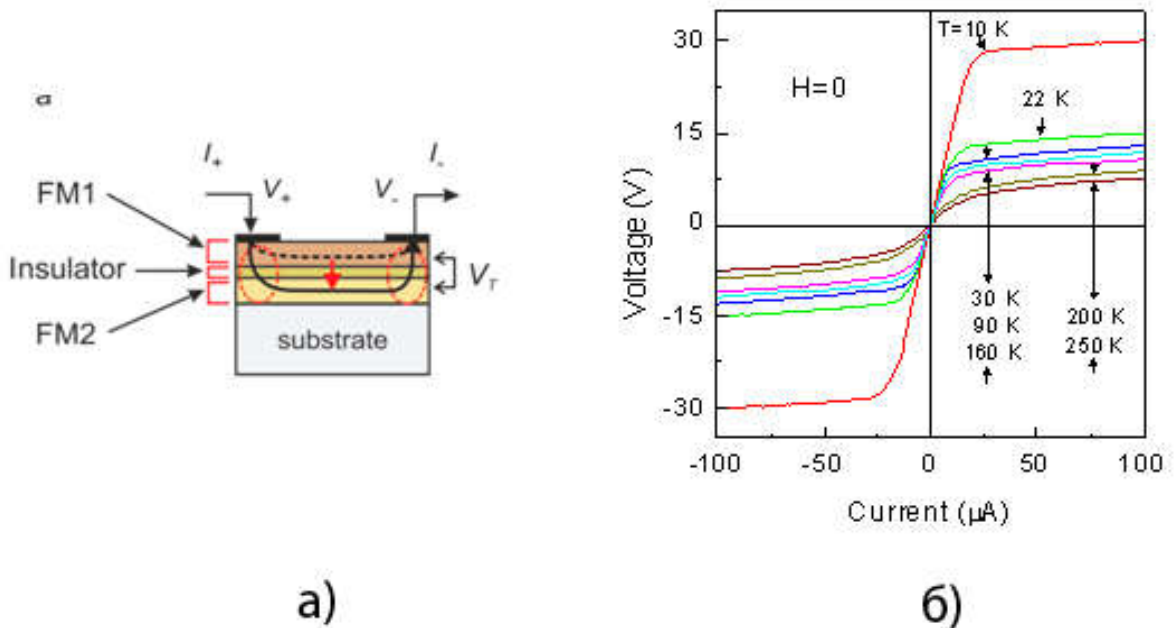


Рисунок 10. а) магнитная туннельная структура в геометрии ток в плоскости структуры; б) вольтамперные характеристики туннельной структуры в геометрии «ток в плоскости» при разных температурах, без магнитного поля.

Эти результаты можно интерпретировать как обратное переключение токового канала. Такое поведение магнитной туннельной структуры можно объяснить, предположив, что ферромагнетики в описываемом случае относятся к разным типам: один из них MASC (majority spin current), другой MISC (minority spin current) типа. Для первого типа спины носителей ориентированы вдоль суммарной намагниченности, а для второго – противоположно. Хорошо известно, что манганит LSMO – ферромагнетик MASC типа, поэтому MnSi следует, по-видимому, отнести к ферромагнетикам MISC типа [17]. Другими словами, в отсутствие магнитного поля, благодаря магнитостатическому взаимодействию \mathbf{M}_M и \mathbf{M}_S ориентированы антипараллельно, сопротивление туннельного

перехода минимально, и при $I > I_{th}$ ток в структуре течет по нижнему слою. Магнитное поле стремится ориентировать \mathbf{M}_M и \mathbf{M}_S параллельно, сопротивление перехода R_T увеличивается и становится больше, чем сопротивление пленки манганита R_{FM1} , ток даже при $I > I_{th}$ начинает течь преимущественно по верхнему слою структуры, ВАХ которого линейна.

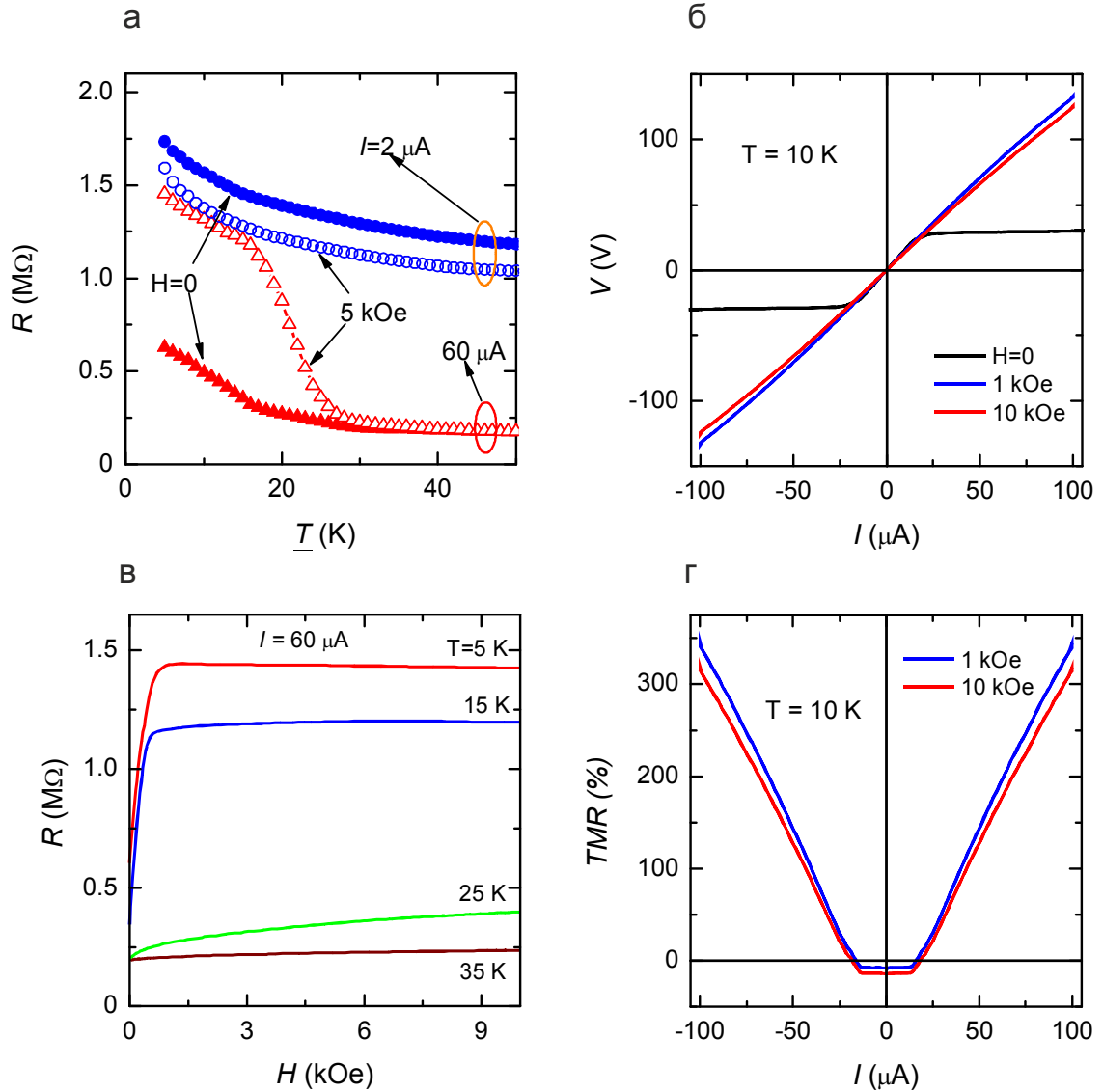


Рисунок 11. Структура LSMO/LSM_{1-δ}O/MnSi/SiO₂ в геометрии «ток в плоскости»:

- а) температурная зависимость сопротивления при двух токах смещения выше и ниже критического I_{th} ; б) ВАХ без магнитного поля и в полях 1 и 10 кЭ; в) зависимость сопротивления от магнитного поля при токе $I = 60 \text{ мкА}$ при различных температурах; г) зависимость магнитосопротивления TMR от тока смещения через структуру.

Также было исследовано влияние оптического облучения на магнитную туннельную структуру. Типичный вид изменений ВАХ при воздействии оптического излучения показан на рисунке 12.

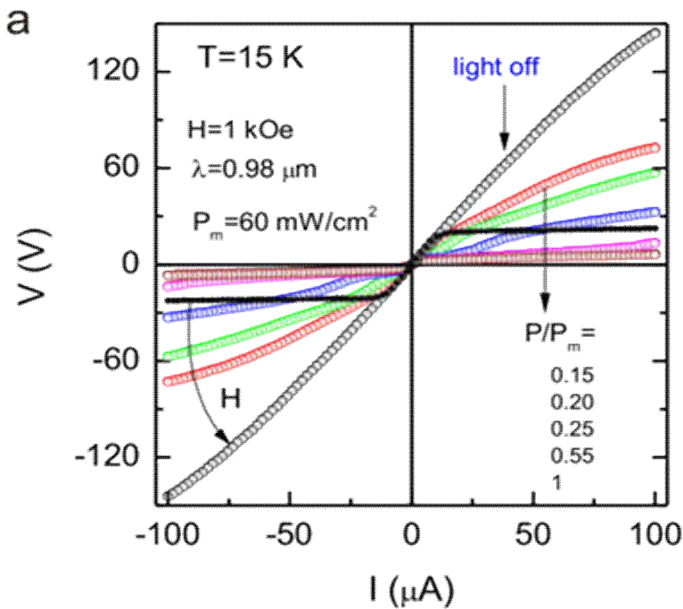


Рисунок 12. ВАХи структуры LSMO/LSM_{1-δ}O/MnSi/SiO₂ в геометрии «ток в плоскости»; зависимости без облучения при $H = 0$ и $H = 1$ кЭ и зависимости при разных мощностях оптического воздействия в магнитном поле.

Хорошо видно, что фотоиндуцированные изменения быстро выходят на насыщение при относительно малых значениях оптической мощности и не меняются при дальнейшем увеличении мощности. Это позволяет говорить о том, что наблюдаемые изменения не связаны с тривиальным нагревом структуры за счет поглощения света. Об этом же свидетельствует спектральная зависимость фотоэлектрического эффекта, которая имеет пороговый характер, т.е. изменения транспортных свойств наблюдаются только для оптического излучения с энергией кванта выше $(h\nu)_{th} \approx 1.05$ эВ [18]. Анализ спектральных зависимостей позволил сделать заключение, что фотоэлектрический эффект связан с межзонным поглощением света в диэлектрической прослойке структуры с образованием электрон-дырочной пары, а не с фотоэмиссией электронов из металлических электродов.

В седьмой главе представлены результаты исследований транспортных и магнитотранспортных свойств структуры Fe/SiO₂/p-Si на постоянном токе в геометрии ток в плоскости структуры (рис. 13 нижняя вставка). На рисунке 13 приведены температурные зависимости сопротивления R данной структуры.

Наблюдаемую особенность в поведении R (резкий, явно выраженный скачок сопротивления образца в температурном диапазоне 250-200 К) можно объяснить переключением токового канала между полупроводниковой подложкой и пленкой железа. При высоких температурах $T > 250$ К ток течет преимущественно по полупроводниковой подложке. Ниже 250 К сопротивление туннельного перехода начинает быстро расти, и при 200 К более выгодным становится токовый путь по верхней пленке железа. Важно отметить, что эффектом переключения токовых каналов можно управлять током смещения.

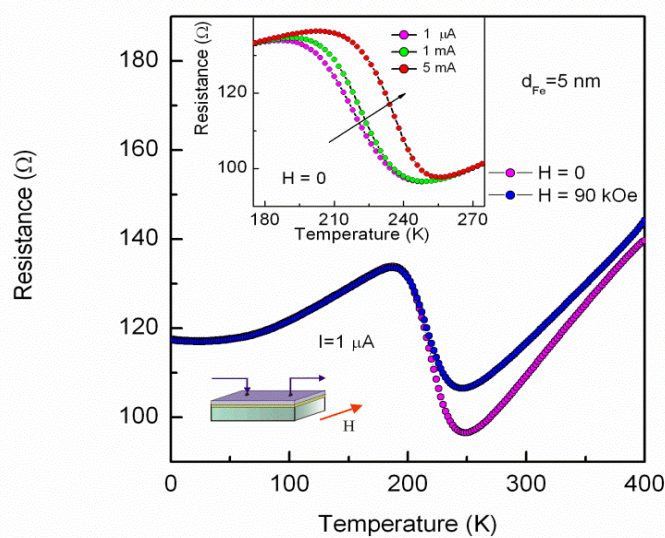


Рисунок 13. Температурные зависимости сопротивления R структуры в поле $H = 0$ и $H = 90$ кЭ; ток смещения $I = 1$ мкА; на вставке показаны зависимости при различных токах смещения.

Для подтверждения предположения о переключении токовых каналов было исследовано планарное устройство (нижняя вставка на рисунке 14а). Как видно, поведение сопротивления устройства при $T > 250$ К (рис. 14) качественно повторяет поведение для структуры. Но ниже 250 К R начинает экспоненциально быстро расти, достигая величины $\sim 10^5$ Ом уже при $T = 100$ К, что свидетельствует о быстром росте сопротивления туннельного перехода Fe/SiO₂/p-Si.

Исследование ВАХ образцов показало, что в случае структуры характеристики оказываются линейными практически во всем температурном диапазоне. А для планарного устройства при температурах ниже 300 К на зависимостях $I(V)$ наблюдается резкий излом (рис. 14б), характерный для систем, где наблюдается насыщение по току.

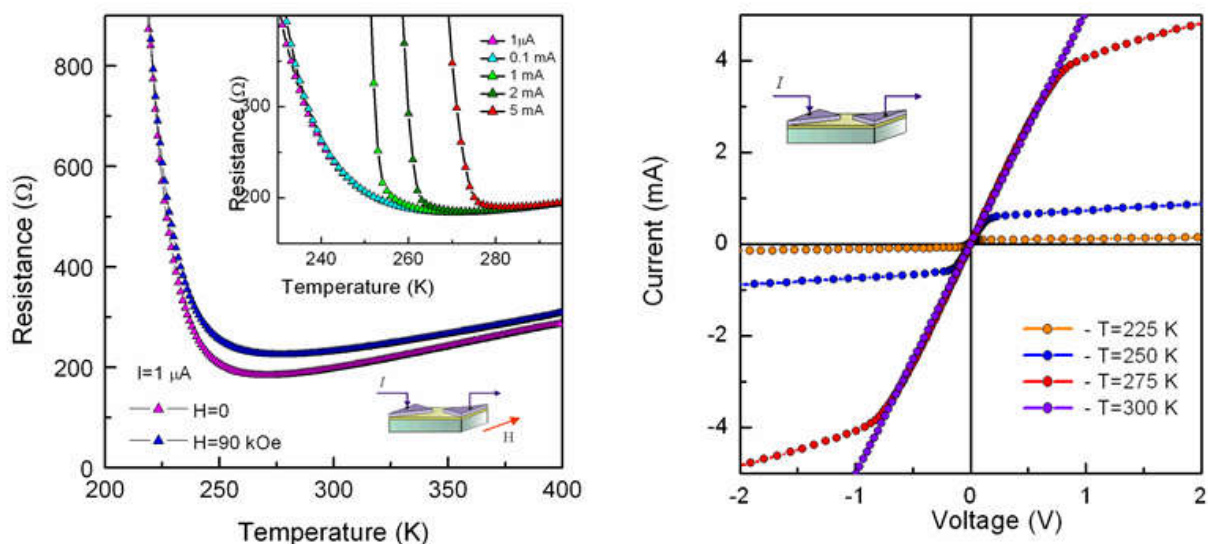


Рисунок 14. а) температурные зависимости сопротивления R для планарного устройства в поле $H = 0$ и $H = 90$ кЭ; ток смещения $I = 1$ мкА; б) ВАХ характеристики для планарного устройства при различной температуре.

Сравнительное исследование ВАХ без магнитного поля и в магнитном поле показало, что выбором величины тока I можно менять знак и величину магнитосопротивления, а переход планарного устройства в режим стабилизации по току приводит к подавлению магниторезистивного эффекта.

Приведенные экспериментальные результаты позволили заключить, что наблюдаемые особенности транспортных и магнитотранспортных свойств как структуры, так и планарного устройства определяются процессами, имеющими место при протекании тока через *метал/диэлектрик/полупроводник* (МДП) диод с барьером Шоттки, свойства которого кардинально зависят от тока смещения.

Исследование частотно-зависимых магнитотранспортных свойств планарного устройства показало, что на температурных зависимостях действительной $R(T)$ и мнимой $X(T)$ частей импеданса наблюдаются ряд аномалий (рис. 15а). Наибольший интерес вызывает магнитоинвариантный пик на $R(T)$ в районе 30 К. В магнитном поле интенсивность пика увеличивается, и он сдвигается в сторону высоких температур (рис. 15б). Анализ литературы показал [19], что пики и ступени на температурных зависимостях $R(T)$ и $X(T)$ действительно наблюдаются для реальных МДП-структур и обусловлены они процессами

перезарядки поверхностных состояний и примесных центров, локализованных вблизи границы оксид/полупроводник [19].

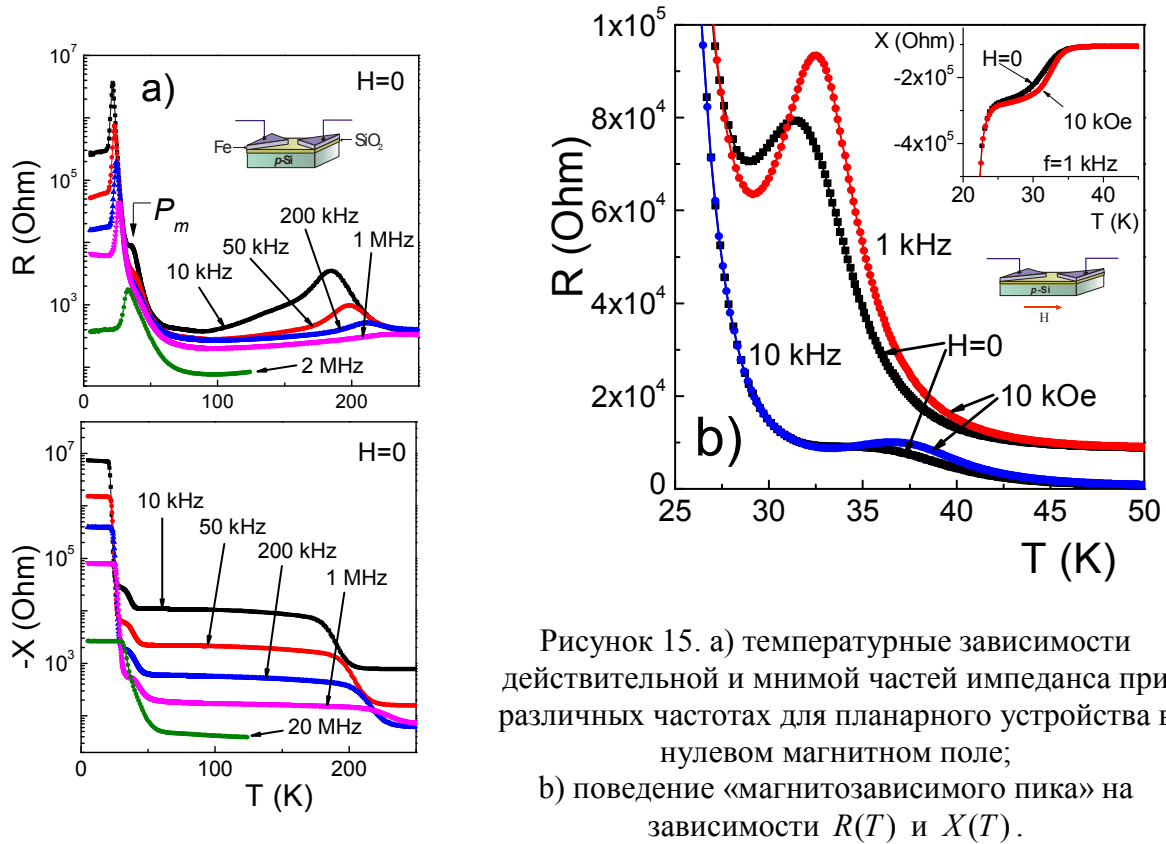


Рисунок 15. а) температурные зависимости действительной и мнимой частей импеданса при различных частотах для планарного устройства в нулевом магнитном поле; б) поведение «магнитоиндуцированного пика» на зависимости $R(T)$ и $X(T)$.

При рассмотрении температурных зависимостей действительной $R(T)$ и мнимой $X(T)$ частей импеданса можно предположить следующий сценарий. При понижении температуры уровень Ферми в р-полупроводнике понижается, приближаясь к границе валентной зоны, и при определенных температурах происходит пересечение уровня Ферми и уровня поверхностного центра. В этот момент имеет место максимальное изменение заряда центров, тогда на температурной зависимости реальной части импеданса будет наблюдаться пик и соответствующая ему ступень на мнимой части импеданса.

В заключении сформулированы основные выводы, полученные в ходе выполнения диссертационной работы.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ РАБОТЫ

- 1) Показано, что в редкоземельных оксиборатах со структурой хантита особенность взаимосвязи магнитной и электрической подсистем определяется спецификой энергетической структуры редкоземельного иона в анионном окружении. Определены факторы, влияющие на величину магнитоэлектрического эффекта: во-первых, это изменение локальной симметрии редкоземельного иона вследствие изменения кристаллической структуры от $R\bar{3}2$ к $R\bar{3}_121$; во-вторых, это локальные искажения анионного окружения редкоземельного иона, вызванные химическим давлением. Установлено, что величина магнитоэлектрического эффекта также зависит от фактора двойникования. В этом случае величина магнитоиндуцированной поляризации определяется как разность величин магнитоэлектрической поляризации подсистем правых и левых изомеров.
- 2) Взаимосвязь магнитной и электрической подсистем в $(La_{0.4}Eu_{0.6})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ обусловлена наличием двух сосуществующих магнитных фаз, характеризующихся различным магнитным состоянием и обладающих разной проводимостью. Методом магнитного резонанса установлено, что магнитное поле и транспортный ток изменяют соотношение этих фаз. На основе модели фазового расслоения, учитывающей разное магнитное состояние и различную проводимость фаз, объяснены наблюдаемые особенности магнитотранспортных и магниторезонансных свойств.
- 3) Установлено, что в соединении $Pb_3Mn_7O_{15}$ корреляция магнитной и электрической подсистем обусловлена наличием ионов марганца переменной валентности Mn^{3+}/Mn^{4+} , и наблюдается в явном виде в двух точках: в районе $T = 250-260$ К, где имеет место возникновение ближнего магнитного порядка, происходит смена механизмов электрической проводимости от модели с перескоком поляронов малого радиуса по соседним узлам к модели с перескоком с переменной длинной прыжка; и в районе $T = 150-160$ К, где происходит зарядовое упорядочение ионов

марганца Mn^{3+} и Mn^{4+} , скорее всего, имеет место магнитное упорядочение кластерного типа.

- 4) В рамках модели косвенной связи определена магнитная обменная структура $Pb_3Mn_7O_{15}$. Справедливость предложенной магнитной структуры подтверждается комплексом магнитных измерений монокристаллов $Pb_3Mn_7O_{15}$, как номинально чистых, так и допированных ионами Ga^{3+} , Ge^{4+} и Fe^{3+} .
- 5) Показано, что электронные магнитотранспортные эффекты в туннельной структуре $LSMO/LSM_{1-\delta}O/MnSi/SiO_2$ в геометрии «ток в плоскости» определяются эффектом переключения токовых каналов между слоями структуры, обладающих различным сопротивлением. Основными элементами, отвечающими за процесс переключения, являются магнитные туннельные переходы под токовыми контактами, сопротивление которых зависит от тока смещения, взаимной ориентации намагниченностей слоев структуры и оптического излучения. Изменение сопротивления туннельного перехода при внешних воздействиях определяет условия переключения токовых каналов и, следовательно, все особенности магнитотранспортных эффектов в магнитной туннельной структуре в геометрии «ток в плоскости».
- 6) Установлено, что явления электронного магнитоузависимого транспорта в гибридной структуре $Fe/SiO_2/p-Si$ обусловлены переходом *метал/диэлектрик/полупроводник* с барьером Шоттки, который формируется на границе раздела $SiO_2/p-Si$, а также процессами перезарядки магнитных поверхностных состояний на границе раздела $SiO_2/p-Si$.

Список публикаций по теме диссертации

1. Демидов, А.А. Магнитные свойства редкоземельного ферробората $SmFe_3(BO_3)_4$ / А.А. Демидов, Д.В. Волков, И.А. Гудим, Е.В. Еремин, В.Л. Темеров // ЖЭТФ. – 2013. Т. 143. – В. 5. – С. 922-928.

2. Еремин, Е.В. Особенности магнитных свойств редкоземельных ферроборатов $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ / Е.В. Еремин, Н.В. Волков, В.Л. Темеров, И.А. Гудим, А.Ф. Бовина // ФТТ. – 2015. – Т. 54. – В. 3. – С. 556-561.
3. Eremin, E.V. Magnetic and Magnetoelectric properties of $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ Single Crystals / E.V. Eremin, N.V. Volkov¹, I.A. Gudim¹, V.L. Temerov // Solid State Phenomena. – 2015. – V. 233-234. – P. 368-370.
4. Бегунов, А.И. Особенности магнитных и магнитоэлектрических свойств $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ / А.И. Бегунов, А.А. Демидов, И.А. Гудим, Е.В. Еремин // Письма в ЖЭТФ. – 2013. – Т. 97. – В. 9. – С. 611–618.
5. Зиненко, В.И. Колебательные спектры, упругие, пьезоэлектрические и магнитоэлектрические свойства кристаллов $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ и $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ / В.И. Зиненко, М.С. Павловский, А.С. Крылов, И.А. Гудим, Е.В. Еремин. // ЖЭТФ. – 2013. – Т. 144. – В. 6. – С. 1174-1183.
6. Волков, Н.В. Намагниченность, магнитоэлектрическая поляризация и теплоемкость $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ / Н.В. Волков, И.А. Гудим, Е.В. Еремин, И.А. Бегунов, А.А. Демидов, К.Н. Болдырев // Письма в ЖЭТФ. – 2014. – Т. 99. – В. 2. – С. 72-80.
7. Freydmann, A.L. Direct and inverse magnetoelectric effects in $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ single crystal / A.L. Freydmann, A.D. Balaev, A.A. Dubrovskiy, E.V. Eremin, V.L. Temerov, I.A. // Journal of Applied Physics. – 2014. – V. 115. – I. 17. – P. 174103-1–174103-8.
8. Pankrats, A. Low-temperature magnetic phase diagram of $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ holmium ferroborate: a magnetic and heat capacity study / A. Pankrats, G. Petrakovskii, A. Kartashev, E. Eremin and V. Temerov // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2009. – V. 21. – P. 436001 (5pp).
9. Begunov, A.I. Features of magnetic, magnetoelectric and magnetoelastic properties of $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ / A.I. Begunov, A.A. Demidov, I.A. Gudim, E.V. Eremin // Solid State Phenomena. – 2014. – V. 215. – P. 352-357.

10. Gudim, I.A. Magnetoelectric Polarization of Paramagnetic $\text{HoAl}_{3-x}\text{Ga}_x(\text{BO}_3)_4$ Single Crystals / I.A. Gudim, E.V. Eremin, M.S. Molokeev, V.L. Temerov and N.V. Volkov // *Solid State Phenomena*. – 2014. – V. 215. – P. 352-357.
11. Volkov, N. Intrinsic inhomogeneity in a $(\text{La}_{0.4}\text{Eu}_{0.6})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ single crystal: Magnetization, transport and electron magnetic resonance studies / N. Volkov, G. Petrakovskii, K. Patrin, K. Sablina, E. Eremin, V. Vasiliev, A. Vasiliev and M. Molokeev. // *Physical Review B*. – 2006. – V. 73. – N. 10. – P. 104401-1 – 104401-10.
12. Volkov, N. Magnetic and transport properties of $(\text{La}_{0.4}\text{Eu}_{0.6})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ single crystal: the key role of intrinsic inhomogeneity / N. Volkov, G. Petrakovskii, P. Böni, E. Clementyev, K. Patrin, K. Sablina, E. Eremin, V. Vasiliev // *JMMM*. – 2006. – V. 300/1. – P. 179-182.
13. Volkov, N.V. Magnetic Properties of Mixed-valence Manganese Oxide $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ / N.V. Volkov, K.A. Sablina, O.A. Bayukov, E.V. Eremin, G.A. Petrakovskii, D.A. Velikanov, A.D. Balaev, A.F. Bovina, P. Böni, E. Clementyev // *Journal of Physics: Condensed Matter*. – 2008. – V.20. – P. 055217 (6pp).
14. Volkov, N.V. Heat Capacity of a Mixed-Valence Manganese Oxide $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ / N.V. Volkov, K.A. Sablina, E.V. Eremin, P. Böni, V.R. Shah, I.N. Flerov, A. Kartashev, J.C.E. Rasch., M. Boehm, J. Schefer // *Journal of Physics: Condensed Matter*. – 2008. – V.20. – P. 445214 (5pp).
15. Volkov, N.V. Dielectric properties of a mixed-valence $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ manganese oxide / N.V. Volkov, E.V. Eremin, K.A. Sablina and N.V. Sapronova // *J Journal of Physics: Condensed Matter*. – 2010. – V. 22. – P. 375901 (6 pp).
16. Volkov, N.V. Temperature-dependent features of $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ crystal structure / N.V. Volkov, L.A. Solovyov, E.N. Eremin, K.A. Sablina, S.V. Misjul, M.S. Molokeev, A.I. Zaitsev, M.V. Gorev, A.F. Bovina, N.V. Mihashenok // *Physica B-Condensed Matter*. – 2012. – V. 407. – N. 4. – P. 689-693.
17. Volkov, N.V. Suppression of the long-range magnetic order in $\text{Pb}_3(\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x)_7\text{O}_{15}$ upon substitution of Fe for Mn / N.V. Volkov, E.V. Eremin, O.A. Bayukov,

- K.A. Sablina, L.A. Solovyev, D.A. Velikanov, N.V. Mikhashenok, E.I. Osetrov, J. Schefer, L. Keller, M. Boehm. Suppression of the long-range magnetic order in $\text{Pb}_3(\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x)_7\text{O}_{15}$ upon substitution of Fe for Mn // JMMM. – 2013. – V. 342. – P. 100–107.
18. Volkov, N.V. Current-driven channel switching and colossal positive magnetoresistance in the manganite-based structure / N.V. Volkov, E.V. Eremin, V.S. Tsikalov, G.S. Patrin, P.D. Kim, Yu Seong-Cho, Dong-Hyun Kim and Nguyen Chau // Journal of Physics D: Applied Physics. – 2009. – V. 42. – P.065005 (6pp).
 19. Volkov, N.V. Magnetic tunnel junction in the current-in-plane geometry: Magnetoresistance; photovoltaic effect / N.V. Volkov, E.V. Eremin, G.S. Patrin, P.D. Kim // Rare Metals. – 2009. – V. 28. – P. 170-173.
 20. Volkov, N.V. Optically driven conductivity and magnetoresistance in a manganite-based tunnel structure / N.V. Volkov, C.G. Lee, P.D. Kim, E.V. Eremin and G.S. Patrin // Journal of Physics D: Applied Physics. – 2009. – V.42. – P. 205009 (4 pp).
 21. Волков, Н.В. Эффекты переключения токовых каналов и новый механизм магнитосопротивления в туннельной структуре / Н.В. Волков, Е.В. Еремин, В.С. Цикалов, Г.С. Патрин, П.Д. Ким, Seong-Cho Yu, Dong-Hyun Kim, Nguyen Chau // Письма в ЖТФ. – 2009. – Т. 35. – В. 21. – С. 33-41.
 22. Volkov, N.V. Current channel switching in the manganite-based multilayer structure / N.V. Volkov, E.V. Eremin, G.S. Patrin, P.D. Kim, Yu Seong-Cho, Dong-Hyun Kim and Nguyen Chau // Journal of Physics: Conference Series. – 2010. – V. 200. – P. 052031 (4 pp).
 23. Волков, Н.В. Туннельный магниторезистивный элемент / Н.В. Волков, Е.В. Еремин, Г.С. Патрин, П.Д. Ким // Патент РФ № 2392697. – 2010. – Бюл. №17.
 24. Volkov, N.V. Magnetic-field- and bias-sensitive conductivity of a hybrid Fe/SiO(2)/p-Si structure in planar geometry / N.V. Volkov, A.S. Tarasov, E.V. Eremin, S.N. Varnakov, G.S. Ovchinikov, S.M. Zharkov // Journal of Applied Physics. – 2011. – V. 109. N.12. – P. 123924-1–123924-8.

25. Volkov, N.V. Magnetic tunnel structures: Transport properties controlled by bias, magnetic field, and microwave and optical radiation / N.V. Volkov, E.V. Eremin, A.S. Tarasov, M.V. Rautskii, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov, G.S. Patrin // JMMM. – 2012. – V. 324. – N. 21. – P. 3579-3583.
26. Volkov, N.V. Bias-Current and Optically Driven Transport Properties of the Hybrid Fe/SiO₂/p-Si Structures / N.V. Volkov, E.V. Eremin, A.S. Tarasov, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov // Solid State Phenomena. – 2012. – V. 190. – P. 526-529.
27. Волков, Н.В. Особенности спин-зависимого электронного транспорта в наноструктурах с чередующимися магнитными и немагнитными слоями в геометрии «ток в плоскости»: в сборнике Метаматериалы и структурно организованные среды для оптоэлектроники, СВЧ-техники и нанофотоники / Н.В. Волков Н.В., Е.В. Еремин, А.С. Тарасов, В.С. Цикалов; под общ. ред. В.Ф. Шабанова и В.Я. Зырянова. – Новосибирск: СО РАН, 2013. – 368 с.
28. Volkov, N.V. Extremely large magnetoresistance induced by optical irradiation in the Fe/SiO₂/p-Si hybrid structure with Schottky barrier / N.V. Volkov, A.S. Tarasov, E.V. Eremin, F.A. Baron, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov // Journal of Applied Physics. – 2013. – V. 114. – P. 093903-1–093903-8.

Список цитированной литературы

1. Попов, Ю.Ф. Особенности магнитных, магнитоэлектрических и магнитоупругих свойств мультиферроика ферробората самария SmFe₃(BO₃)₄ / Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, А.К. Звездин, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, И.А. Гудим // ЖЭТФ. – 2010. – Т. 138. – С. 226-230.
2. Мухин, А.А. Гигантский магнитодиэлектрический эффект в мультиферроике SmFe₃(BO₃)₄ / А.А. Мухин, Г.П. Воробьев, В.Ю. Иванов, А.М. Кадомцева, А.С. Нарижная, А.М. Кузьменко, Ю.Ф. Попов, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим // Письма в ЖЭТФ. – 2011. – Т. 93. – Вып. 5. – С. 305-311.
3. Звездин, А.К. Магнитоэлектрические и магнитоупругие взаимодействия в мультиферроиках NdFe₃(BO₃)₄ / А.К. Звездин, Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева,

- Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, А.В. Кувардин, Е.А. Попова // Письма в ЖЭТФ. – 2006. – Т. 83. – В. 11. – С. 600-605.
4. Liang, K.-C. Giant magnetoelectric effect in $\text{HoAl}_3(\text{BO}_3)_4$ / K.-C. Liang, R.P. Chaudhury, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, C.W. Chu // Phys. Rev. B. – 2011. – V. 83 P. – 180417-4.
 5. Chaudhury, R.P. Magnetoelectricity and magnetostriction due to rare-earth moment in $\text{TmAl}_3(\text{BO}_3)_4$ / R.P. Chaudhury, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, C.W. Chu // Phys. Rev. B. – 2010. – V. 81. – P. 220402-4.
 6. Liang, K.-C. Magnetoelectricity in the system $\text{RAl}_3(\text{BO}_3)_4$ ($\text{R} = \text{Tb}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}$) / K.-C. Liang, R.P. Chaudhury, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim, V.L. Temerov, C.W. Chu // J. of Phys.: Conf. Ser. – 2012. – V. 400. – P. 032046-6.
 7. Волков, Н.В. Намагниченность, магнитоэлектрическая поляризация и теплоемкость $\text{HoGa}_3(\text{BO}_3)_4$ / Волков Н.В., Гудим И.А., Еремин Е.В., Бегунов А.И., Демидов А.А., Болдырев К.Н. // Письма в ЖЭТФ. – 2014. – Т. 99. – №1-2. – С. 72-80.
 8. Кадомцева, А.М. Магнитоэлектрические и магнитоупругие свойства редкоземельных ферроборатов / А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, Г.П. Воробьев, А.П. Пятаков, С.С. Кротов, К.И. Камилов, В.Ю. Иванов, А.А. Мухин, А.К. Звездин, А.М. Кузьменко, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим, В.Л. Темеров // ФНТ. – 2010. – Т. 36. – Вып. 6. – С. 640-653.
 9. Usui, T. Observation of quadrupole helix chirality and its domain structure in $\text{DyFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / T. Usui, Y. Tanaka, H. Nakajima, M. Taguchi, A. Chainani, M. Oura, S. Shin, N. Katayama, H. Sawa, Y. Wakabayashi, T. Kimura // Nature materials. – 2014. – V. 13. – P. 611-618.
 10. Уайт, Р. Квантовая теория магнетизма / Р. Уайт. – М.: Мир, 1972. – 306 с.
 11. Rasch, Julia C.E. Structural properties of $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ determined from high-resolution synchrotron powder diffraction / Julia C.E. Rasch, D.V. Sheptyakov, J. Schefer, L. Keller, M. Boehm, F. Gozzo, N.V. Volkov, K.A. Sablina, G.A.

- Petrakovskii, H. Grimmer, K. Conder, J.F. Loffler // J. Solid State Chem. – 2009. – V. 182. – P. 1188-1192.
12. Volkov, N.V. Heat Capacity of a Mixed-Valence Manganese Oxide $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ / N.V. Volkov, K.A. Sablina, E.V. Eremin, P. Böni, V.R. Shah, I.N. Flerov, A. Kartashev, J.C.E. Rasch., M. Boehm, J. Schefer // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2008. – V.20. – P. 445214 (5pp).
13. Volkov, N.V. Temperature-dependent features of $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ crystal structure / Volkov N.V., Solovyov L.A., Eremin E.V., Sablina K.A., Misjul S.V., Molokeyev M.S., Zaitsev A.I., Gorev M.V., Bovina A.F., Mihashenok N.V. // Physica B-Condensed Matter. – 2012. – V. 407. – N. 4. – P. 689-693.
14. Anderson, P.W. New Approach to the Theory of Superexchange Interactions / P.W. Anderson // Phys. Rev. – 1959. – V. 115. – P. 2-13.
15. Еремин, М.В. К теории косвенного обменного взаимодействия ионов в диэлектриках / М.В. Еремин // ФТТ. – Т. 24. – В. 2. – С. 423-432.
16. Баяюков, О.А. Прогноз магнитных свойств диэлектриков возможен / О.А. Баяюков, А.Ф. Савицкий // ФТТ. – 1984. – Т. 36. – В. 7. – С. 1923-1938.
17. Hortamani, M. Epitaxy of Mn on Si(001): Adsorption, surface diffusion, and magnetic properties studied by density-functional theory / M. Hortamani, H. Wu, P. Kratzer, M. Scheffler // Phys. Rev. B. – 2006. – V. 74. – I. 20. P. 5305-5315.
18. Volkov, N.V. Optically driven conductivity and magnetoresistance in a manganite-based tunnel structure / N.V. Volkov, C.G. Lee, P.D. Kim, E.V. Eremin and G.S. Patrin // Journal of Physics D: Applied Physics. – 2009. – V.42. – P. 205009 (4 pp).
19. Losee, D.L. Admittance spectroscopy of impurity levels in Schottky barriers / D.L. Losee // J. Appl. Phys. – 1975. – V. 46. – P. 2204.