

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ДОНЕЦЬКИЙ ФІЗИКО-ТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ ІМ. О.О. ГАЛКІНА

Бойло Ірина Вікторівна



УДК 539.292

**СТРУМОПЕРЕНЕСЕННЯ В ТУНЕЛЬНИХ СТРУКТУРАХ
З НЕОДНОРІДНИМИ ОКСИДНИМИ ШАРАМИ**

01.04.07 – фізика твердого тіла

Автореферат

дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Донецьк-2012

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Донецькому фізико-технічному інституті ім. О.О. Галкіна Національної академії наук України.

Науковий керівник: кандидат фізико–математичних наук, старший науковий співробітник **Білоголовський Михайло Олександрович**, Донецький фізико-технічний інститут ім. О.О. Галкіна НАН України, старший науковий співробітник відділу теорії динамічних властивостей складних систем

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник **Кузнецов Геннадій Васильович**, Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Інститут високих технологій, завідувач НДЛ «Фізика і техніка напівпровідників», професор кафедри нанофізики конденсованих середовищ

доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник **Таренков Володимир Юрійович**, Донецький фізико-технічний інститут ім. О.О. Галкіна НАН України, завідувач відділу комплексних досліджень в екстремальних умовах

Захист відбудеться «__» __ січня ____ 2013 року о 14.00 годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 11.184.01 при Донецькому фізико-технічному інституті ім. О.О. Галкіна НАН України (вул. Р. Люксембург 72, м. Донецьк, 83114).

З дисертацією можна ознайомитися у бібліотеці Донецького фізико-технічного інституту ім. О.О. Галкіна НАН України (вул. Р. Люксембург 72, м. Донецьк, 83114).

Автореферат розісланий «__» __ грудня ____ 2012 року.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради Д 11.184.01,
к.ф.-м.н., с.н.с.



Т.М. Тарасенко

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Досягнення сучасної електроніки обумовлені, головним чином, суттєвим прогресом в області плівкової технології. В міру ускладнення властивостей базових елементів і зменшення їх розміру до нанометрових все більшого значення набувають фундаментальні та прикладні дослідження провідних і діелектричних шарів, оскільки їх властивості можуть радикально відрізнятись від ідеальних через наявність різних за характером і масштабом неоднорідностей, що мають досить складні профілі розподілу. Такі матеріали та структури на їх основі часто демонструють унікальні характеристики, відсутні у їх монокристалічних аналогів.

Дослідження функціональних гетероструктур з розупорядкованими шарами ізоляторів являє собою самостійну наукову проблему, вирішення якої має важливе значення для подальшого розвитку мікро- і наноелектроніки, тому що значна частина сучасних твердотільних пристроїв заснована на ефекті квантовомеханічного тунелювання крізь класично заборонену область, яка формується надтонкою плівкою діелектрика. При цьому в якості ізолятора зазвичай застосовуються бінарні оксиди простих металів, з яких найбільш популярним в структурах метал (М) - ізолятор (І) – метал (М) є оксид алюмінію. До цих пір основною моделлю, яка використовується при аналізі електричних струмів крізь такі шари, залишалося наближення просторово однорідного потенціального бар'єру з фіксованими параметрами, які при досить малих напругах зсуву залишаються незмінними. Проте останнім часом стало ясно, що такий підхід є недостатнім. Подальше зменшення товщини ізолюючого шару, який зазвичай знаходиться в аморфному стані, показало, що він не є однорідним і що в ньому істотну роль відіграють дефектні стани. Коло матеріалів, що зараз використовуються для створення тунельного бар'єру, значно розширилося і включає в себе не тільки бінарні оксиди простих металів, а й складні оксиди перехідних металів з порівняно високою провідністю, властивості яких значною мірою визначаються станом кисневої підсистеми і тому є істотно неоднорідними навіть при досить великих товщинах. Крім того, виявилось, що транспортні характеристики таких шарів можуть суттєво залежати від електричного струму через них, і це призвело до появи нового пасивного елемента мікро- і наноелектроніки – мемристора [1]. Нарешті, подальше зменшення товщини діелектричних шарів виявило необхідність врахування ефектів нерівноважності в тунельних системах, зокрема, у випадку гібридних структур із феромагнітними та надпровідними обкладками. Все це вимагало перегляду існуючих теоретичних уявлень про ефект електронного тунелювання в твердотільних структурах із неоднорідними оксидними шарами.

Саме таке завдання й вирішувалося в даній дисертаційній роботі. Її виконання було стимульовано, в першу чергу, трьома практичними потребами: (а) необхідністю заміни діоксиду кремнію в польових транзисторах та інших елементах мікросхем на нові матеріали з поліпшеними діелектричними характеристиками, що дозволило б суттєво зменшити розміри інтегральних мікросхем; (б) можливістю вдосконалення

функціональних характеристик мемристора шляхом розширення кола оксидів з резистивними перемиканнями; (в) активним пошуком найбільш ефективних шляхів інжекції спін-поляризованих електронів з феромагнітного в немагнітні провідники у спінтронних пристроях. Для досягнення поставлених цілей у цій роботі були запропоновані і розвинуті досить прості і наочні теоретичні моделі, які дозволили якісно і кількісно описати процес тунельного струмоперенесення в твердотільних гетероструктурах з неоднорідними оксидними шарами.

Мета і задачі дослідження. *Метою дисертаційної роботи* була розробка теоретичних моделей, які дозволили б якісно і кількісно описати процеси зарядового транспорту в твердотільних системах з нанорозмірними розупорядкованими оксидними прошарками, та засобів їх експериментальної перевірки.

Для досягнення поставленої мети вирішувалися наступні завдання:

- розрахунок тунельних характеристик МІМ переходів з нанорозмірними розупорядкованими плівками ізолятора, що базується на врахуванні ефектів пружного та непружного тунелювання крізь неоднорідні потенціальні бар'єри;

- дослідження еволюції дефектної структури кисневої підсистеми поблизу границі розподілу металевого інжектора зі складним оксидом перехідних металів під дією зовнішніх електричних полів і з'ясування природи резистивних перемикань у таких системах;

- дослідження впливу ефектів нерівноважності на процеси струмоперенесення з феромагнітного металу (F) в надпровідник (S) крізь оксидні шари високої прозорості та розробка нового методу визначення величини спінової поляризації електронів в магнітному електроді.

Об'єкт дослідження – твердотільні тунельні гетероструктури метал – оксид - метал; феромагнітний інжектор - оксид – надпровідник; контакт металевого інжектора зі складним оксидом перехідних металів.

Предмет дослідження – вольт-амперні характеристики, їх похідні по напрузі та спектральна щільність дробового шуму в досліджуваних тунельних структурах.

Наукова новизна. Дисертаційна робота присвячена теоретичному дослідженню зарядового та спінового транспорту в гетероструктурах на основі нанорозмірних оксидних шарів з урахуванням їх просторової неоднорідності. В ній були одержані такі принципово нові наукові результати:

1. Запропоновано загальний підхід до розрахунку транспортних характеристик гетероструктур з нанорозмірними розупорядкованими плівками ізолятора. Він базується на врахуванні ефектів пружного та непружного тунелювання і дозволяє пояснити природу універсального розподілу ймовірностей проходження електронів крізь ізолюючий прошарок товщиною порядку декількох атомних шарів (близько

одного нанометра) та аномальних вольт-амперних кривих для оксидних шарів товщиною порядку декількох нанометрів.

2. Розвинена теоретична модель резистивних перемикань в контактах, створених металевим електродом та оксидом із структурою перовскіту. Згідно з нею основні зміни опору таких гетероструктур відбуваються в нанорозмірній області поблизу інтерфейсу метал-складний оксид, локальна мікроструктура якої змінюється в результаті перерозподілу кисневих вакансій в просторі і в часі під дією змінних електричних полів. Результати чисельних розрахунків для контактів металу з ітрій-барієвим купратом добре узгоджуються з відповідними експериментальними даними і можуть бути корисними для створення нових запам'ятовуючих пристроїв оксидної електроніки.

3. Теоретично досліджено нерівноважні ефекти в тунельних контактах феромагнітного металу з надпровідниковою плівкою, товщина якої мала в порівнянні з довжиною, на якій відбувається переворот електронного спіну. Показано, що з ростом ступеня поляризації електронів провідності в феромагнітному інжекторі відбувається зростання опору тунельного переходу феромагнетик - ізолятор – надпровідник. Цей ефект, на основі якого розроблено новий метод визначення величини спінової поляризації електронів в магнітному електроді, був підтверджений експериментально.

Достовірність наукових результатів. Достовірність отриманих результатів підтверджується використанням сучасних методів теорії електронного транспорту в складних структурах, які засновані на ідеях теорії розсіювання і детально перевірені на різних мезоскопічних об'єктах, узгодженістю теоретичних висновків з експериментальними даними, відомими з літератури та отриманими в роботах за участю автора.

Практичне значення отриманих результатів. Практична цінність даної роботи полягає в тому, що вона надає нову інформацію про струмоперенесення в тунельних структурах з реальними оксидними прошарками нанометрової товщини, яка дозволяє цілеспрямовано та контрольовано управляти процесами зарядового і спінового транспорту в мікро- і наноелектронних пристроях. Теоретичний аналіз впливу неоднорідностей просторової структури ізолюючих шарів в розглянутих твердотільних системах дозволив отримати наступні практично значимі результати:

1. Показано, що аномально низький опір тунельних контактів метал – ізолятор - метал з розупорядкованими діелектричними шарами, який спостерігається в експериментах (зокрема, в контактах металу з купратами [2]), є наслідком просторової неоднорідності бар'єрного шару.

2. Розвинений новий підхід до аналізу дефектної мікроструктури приповерхневих шарів складних оксидів перехідних металів, який базується на вимірюванні вольт-амперних характеристик відповідних контактів з металевим

електродом і полягає в знаходженні показника степеня в залежності їх низькотемпературної диференціальної провідності від електричної напруги.

3. Запропоновано модель ефекту резистивних перемикачів, що описує зміни опору поблизу інтерфейсу металу зі складним оксидом під дією прикладеного електричного поля як результат електроміграції кисневих вакансій. Висновки відповідних розрахунків для контактів металу з ітрій-барієвим купратом добре узгоджуються з відповідними експериментальними даними і додають нові можливості щодо управління процесами перемикачів резистивних станів в нових запам'ятовуючих пристроях оксидної електроніки.

4. Дослідження ефекту зменшення зарядового струму в тунельній гетероструктурі феромагнітний метал – ізолятор - надпровідник дозволило пояснити зростання її диференціального опору, обумовлене виникненням нерівноважного стану в надпровідній плівці внаслідок спінової інжекції, і запропонувати новий метод визначення величини спінової поляризації електронів провідності феромагнітного металу.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Основні результати дисертаційної роботи були одержані в рамках науково-дослідних робіт, які проводилися у Донецькому фізико-технічному інституті імені О.О. Галкіна НАН України при виконанні наступних бюджетних тем:

- «Транспортні і магнітні властивості мезоскопічних гетероструктур», 07.2006–06.2009 (державний реєстраційний номер 0106U006935);
- «Електронні і магнітні властивості нано- і мезоскопічних складних систем», 07.2009–06.2014 (державний реєстраційний номер 0109U004917);
- «Спінполяризований транспорт і ефекти близькості в наноконтактах надпровідник-феромагнетик», 08.2010–12.2014 (державний реєстраційний номер 0110U005700).

Особистий внесок здобувача. Основні результати дисертації викладені в роботах [1* -11*]. Вибір напрямку досліджень і аналіз відповідних експериментальних результатів відбувалися в тісній співпраці з науковим керівником - канд. фіз.-мат. наук Білоголовським М.О. Теоретична частина досліджень [1* -11*] була виконана безпосередньо автором. Зокрема, дисертантом був проведений детальний аналіз попередніх публікацій з проблеми струмоперенесення крізь розупорядковані оксидні шари і сформульовані основні невирішені проблеми в даній області, запропонований новий підхід до розрахунку тунельних характеристик гетероструктур з нанорозмірними неоднорідними плівками ізолятора, що враховує як пружні, так і непружні ефекти переносу заряду, розроблена оригінальна теоретична модель резистивних перемикачів в контактах, створених металевим електродом та оксидом із структурою перовскіту, виконані теоретичні дослідження ефектів нерівноважності в контактах феромагнітного металу з надпровідником та розроблений принципово

новий метод визначення величини спінової поляризації електронів в магнітному інжекторі. Що стосується експериментальної частини робіт [1^{*}-3^{*}, 6^{*}-10^{*}], то в даному випадку завдання дисертанта полягало в обробці та аналізі результатів, одержаних співавторами-експериментаторами, а також їх порівнянні з висновками чисельних комп'ютерних розрахунків. Крім того, автор брала безпосередню участь у написанні всіх статей та підготовці доповідей.

Публікації. За темою дисертації опубліковано 11 друкованих робіт, які включають 7 статей у провідних рецензованих наукових журналах України, Росії та зарубіжжя [1^{*}-7^{*}] і 4 публікації в матеріалах міжнародних наукових конференцій [8^{*}-11^{*}].

Апробація результатів роботи. Основні результати роботи доповідалися і обговорювалися на наступних конференціях: Міжнародний форум з нанотехнологій (Москва, Російська Федерація, 3-5 грудня 2008); German-Ukrainian Symposium on Nanoscience and Nanotechnology (Essen, Germany, 22-25 вересня 2008); 17th International Symposium “Nanostructures: Physics and Technology” (Мінськ, Беларусь, 22-26 червня 2009), International Conference “Functional materials. ICFM’2009” (Партеніт, Україна, 5-10 жовтня 2009), Міжнародна наукова конференція “Химическая термодинамика и кинетика” (Донецьк, Україна, 12-14 вересня 2012), 4th German-Ukrainian Symposium “Physics and Chemistry of Nanostructures and Nanobiotechnology” (Ilmenau, Germany, 18-20 вересня 2012). Крім того, вони неодноразово доповідалися на звітних конференціях Донецького фізико-технічного інституту ім. О.О. Галкіна НАН України та на наукових семінарах відділу теорії динамічних властивостей складних систем ДонФТІ НАНУ.

Структура та обсяг дисертації. Дисертація складається зі вступу, п'яти розділів, висновків та списку цитованої літератури. Робота викладена на 124 сторінках та містить 25 рисунків. Бібліографічний список включає 114 літературних джерел.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтована актуальність обраної теми, сформульовані основні цілі і завдання дисертаційної роботи, продемонстрована наукова новизна, розкрито практичне значення виконаних досліджень, вказана структура дисертації і представлені основні результати, що виносяться на захист.

Перший розділ являє собою огляд літературних джерел, в яких обговорюється фізика струмоперенесення в тунельних гетероструктурах з нанорозмірними розупорядкованими оксидними прошарками. Особлива увага приділена практичним

аспектам даної проблеми, зокрема, порівняно великим струмам витоку крізь надтонкі оксидні шари в напів- та надпровідникових приладах. Ця обставина була виявлена в останні роки в зв'язку з необхідністю збільшення електричної ємності затвора в метал – діелектрик - напівпровідник транзисторі за рахунок зменшення товщини оксидного прошарку та збільшення зарядової ємності запам'ятовуючого конденсатора з метою підвищення щільності інформації оперативного запам'ятовуючого пристрою, а також впровадженням нових блокуючих шарів з високою діелектричною проникністю в кремнієвих флеш-елементах пам'яті [3]. Подібна проблема існує і в базових елементах надпровідникової електроніки, якими є переходи надпровідник – ізолятор - надпровідник (SIS), де в якості тунельного бар'єру традиційно використовується оксид алюмінію Al_2O_3 . Подальше зменшення розмірів SIS структур привело, як і у випадку напівпровідникових приладів, до виникнення аномально високих струмів витоку [4]. Згідно з європейською дорожньою картою надпровідникової електроніки [5], вирішення цього питання дозволить домогтися конкурентної спроможності останньої в порівнянні з вже існуючою напівпровідниковою технологією. Завданням першої частини даних досліджень було (а) розробити достатньо просту модель, що пояснює причину, по якій ймовірність перенесення заряду крізь нанорозмірні шари розупорядкованого оксиду в багато разів перевищує оцінки стандартної теорії тунелювання, та виявити, чому цей ефект спостерігається саме в надтонких оксидних шарах; (б) запропонувати метод перевірки даної моделі на практиці та (в) порівняти чисельні розрахунки вольт-амперних характеристик тунельних пристроїв з неоднорідними шарами оксидів з даними експериментів. Вирішенню цих питань присвячений другий розділ роботи.

Ще один аномальний результат пов'язаний з нестандартною залежністю диференціальної провідності $G(V) = dI(V)/dV$ тунельних структур від прикладеної напруги V . Цей ефект найбільш помітний у контактах металевого інжектора зі складними оксидами перехідних металів, однак може спостерігатися і в тунельних структурах з простими бінарними сполуками. Відповідно до традиційної теорії тунелювання, через зміну ефективної висоти бар'єру з V залежність провідності МІМ переходу від електричної напруги має бути квадратичною, що підтверджується експериментами для тонких оксидних шарів з високим потенціальним бар'єром [6]. Проте в тих випадках, коли бар'єри були порівняно низькими, а товщини ізолюючих прошарків, відповідно, порівняно великими, спостерігалась аномальна степенева залежність $G(V) = G(0) + \text{const} \cdot V^n$ з $n \neq 2$. Досить часто показник степеня був близький до 1.3. Так, наприклад, для тунельних переходів з MgO бар'єром [7] при $V < 100$ мВ спостерігався показник степеня, рівний 1.63, а далі, аж до 500 мВ, до цієї залежності додавався ще один внесок, пропорційний V^n , але вже з $n = 4.06$. Автори роботи [7] пояснюють цей факт тим, що в більш товстих оксидних бар'єрах струмоперенесення відбувається за участю дефектних станів всередині них, як це буде детально описано в третьому розділі дисертації, де, зокрема, наведено аналіз

відповідних експериментальних фактів для манганітів [8], в яких степенева залежність $G(V)$ існує в досить широкій області напруг, причому $n = 1.3 - 1.4$.

Подальше підвищення прикладеної напруги V часто призводить до появи двозначних вольт-амперних характеристик $I(V)$ у МІМ переходів з оксидними прошарками. Вперше подібні гістерезисні ефекти були виявлені ще в 60-х роках минулого століття в бінарних оксидах перехідних металів, проте справжній бум у цій області розпочався після публікації [1], в якій було звернено увагу на те, що гетероструктура метал – ізолятор – метал з рухомими іонами кисню в оксидному прошарку і є той самий мемристор, існування якого було передбачене ще в 1971 році. Незважаючи на суттєвий прогрес у створенні та впровадженні мемристорів в мікро- і наноелектроніку, фундаментальні проблеми, пов'язані з управлінням процесами резистивних перемикачів в них, залишаються дискусійними. До них відносяться (а) фізична природа виникнення гістерезисних явищ в трьох- і двошарових контактах на основі оксидних сполук; (б) розмір активної області мемристора; (в) можливість кількісного (а не тільки якісного) опису роботи даного пристрою. Ці питання досліджуються в четвертому розділі дисертації на прикладі контактів срібла з ітрій-барієвим купратом YBCO в рамках припущення про перерозподіл кисневих вакансій у зразку в результаті пропускання крізь нього періодично змінюваного струму.

В останні роки все більше уваги приділяється процесам струмоперенесення в гібридних гетероструктурах, що складаються з провідників з різним типом електронного впорядкування. Одним з найбільш цікавих об'єктів у цьому плані є контакт феромагнітного і надпровідного металів з принципово різними спектрами квазічастинкових збуджень [9]. Створення потенціальних бар'єрів високої прозорості за допомогою надтонких оксидних шарів відкриває нові можливості для реалізації та дослідження нерівноважних процесів в FIS контактах, зокрема, спінової нерівноважності в результаті інтенсивної інжекції квазічастинок з феромагнітного металу в немагнітний матеріал. Відмінність стаціонарного розподілу електронних станів від рівноважного в цьому випадку визначається балансом між інжекцією і швидкостями релаксаційних процесів, пов'язаних з розсіюванням електронів на домішках і фонах, роль яких полягає у відновленні термічної рівноваги. У п'ятому розділі роботи ми вивчаємо нерівноважні явища в контакті феромагнетика з високою спіновою поляризацією та надпровідникового шару, товщина якого мала в порівнянні з довжиною перевертання електронного спіну, і порівнюємо наші розрахунки з експериментальними даними, отриманими нашими співавторами.

Другий розділ дисертації присвячено аналізу транспортних характеристик МІМ структур з нанорозмірними розупорядкованими плівками ізолятора товщиною декілька міжатомних відстаней з великою кількістю пружно розсіюючих центрів. Основне завдання розділу полягало в з'ясуванні питання про те, чи може розподіл ймовірностей D проходження електронів крізь такий шар бути універсальним, тобто не залежати від його мікроскопічних характеристик. При наявності інтенсивного пружного розсіювання шлях всередині непровідного оксиду, який проходить

електрон, залежить від конкретної локальної конфігурації дефектних центрів і, до того ж, від точки до точки буде помітно змінюватися висота бар'єру $V_B(x)$. Проте в традиційній теорії тунелювання [6] ця обставина зазвичай ігнорується, і прозорість бар'єра D вважається постійною величиною. Саме це наближення і є причиною неузгодженості між теорією і експериментом в оцінках транспортних характеристик розупорядкованих діелектричних шарів. В цьому розділі ми звертаємо увагу на те, що послідовний аналіз процесів струмопереносу через «брудні» нанорозмірні плівки ізоляторів повинен обов'язково брати до уваги функцію розподілу прозоростей $\rho(D)$.

У разі надтонких діелектричних шарів потенціальний бар'єр можна апроксимувати одновимірною дельта-функцією $V_B(x) = H\delta(x)$, де координата x обчислюється уздовж траєкторії електрона всередині бар'єру, а параметр H дуже сильно змінюється для різних траєкторій. Зшиваючи хвильові функції електронів ліворуч і праворуч від бар'єру, ми знаходимо амплітуду ймовірності проходження електрона крізь нього $t = i/(i - Z)$, де $Z = \int V_B(x)dx/(\hbar v_F)$, $v_F = \hbar k_F/m$ - ферміївська швидкість електронів в обкладинках переходу. Тоді прозорість бар'єру $D(Z) = |t(Z)|^2 = 1/(1 + Z^2)$. Оскільки параметр Z змінюється хаотичним чином при переході від однієї траєкторії до іншої, то після усереднення по площі інтерфейсу, яка у багато разів перевершує товщину бар'єру, він виявиться більш-менш рівномірно розподіленим від нуля до одиниці з імовірністю $\rho(Z) = 2\hbar\bar{G}/e^2$, де \bar{G} - це макроскопічна провідність даної гетероструктури $\bar{G} = 2e^2 \int_0^\infty \rho(Z)D(Z)dZ/h$. Якщо перейти від розподілу $\rho(Z)$ до $\rho(D) = \rho(Z) \cdot dZ(D)/dD$, тоді одержимо, що розподіл ймовірностей переносу заряду крізь надтонкий розупорядкований потенційний бар'єр являє собою функцію з двома максимумами при $D = 0$ і $D = 1$:

$$\rho(D) = \frac{\hbar\bar{G}}{e^2} \frac{1}{D^{3/2}(1-D)^{1/2}}. \quad (1)$$

Цей результат був одержаний в 1997 році Шепом і Бауером [10], які припустили, що товщина «брудного» інтерфейсу між двома металевими електродами набагато менше, ніж ферміївська довжина хвилі в них. Вивід формули (1) демонструє, що, насправді, вона має більш широку область використання, а саме, співвідношення (1) буде справедливим завжди, коли прозорість ізолюючого шару D є функцією одного параметру Z , рівномірно розподіленого від нуля до нескінченності. За цих умов функція $\rho(D)$ не залежить від будь-яких мікроскопічних властивостей інтерфейсу, тобто є універсальною.

За допомогою формули (1) можна обчислити середнє значення будь-якої характеристики, яка є функцією прозорості D : $\bar{f} = \sum_i f_i(D) = \int dD f(D) \rho(D)$, де індекс

i відповідає різним каналам провідності. Зокрема, експериментальна перевірка співвідношення (1) можлива у разі, коли один із металевих електродів в МІМ структурі переведений в надпровідний (S) стан. Як свідчить рис. 1, форма вольт-амперних кривих NIS переходу радикально залежить від прозорості D нанорозмірної оксидної ізолюючої плівки, тому порівняння усередненої $I-V$ характеристики з даними вимірювань для NIS структури може служити надійним критерієм справедливості формули (1).

Розрахунки $I-V$ кривих для NIS переходів з неоднорідним надтонким оксидним прошарком були виконані за допомогою методу [11], в основі якого лежить фейнманівський принцип суперпозиції квантовомеханічних амплітуд ймовірностей. При цьому враховувалась специфіка андріївського відображення електронно-подібної квазічастинки в дірково-подібну (або дірково-подібної в електронно-подібну) з амплітудою ймовірності, яка дорівнює

$$r_A(\Theta) = \left[(\varepsilon + i\delta) - \text{sign}(\varepsilon) \sqrt{(\varepsilon + i\delta)^2 - |\Delta(\Theta)|^2} \right] \exp(\mp i\Phi(\Theta)) / |\Delta(\Theta)|, \text{ де } \delta - \text{нескінченно}$$

мала позитивна величина, $|\Delta(\Theta)|$ і $\Phi(\Theta)$ - модуль і фаза надпровідного параметра порядку. Конкретна залежність від кута Θ визначається тією симетрією параметра порядку, яка реалізується в даному надпровіднику. В традиційних матеріалах з s -хвильовою симетрією фаза постійна і може вважатися рівною нулю, а залежність $|\Delta(\Theta)|$ є слабкою і в більшості випадків $|\Delta(\Theta)| = \Delta_s$. У надпровідниках d -типу, зокрема, купратних сполуках зі структурою перовскіту, параметр порядку залежить від кута Θ в ab -площині елементарної комірки $\Delta(\Theta) = \Delta_d \cos(2(\Theta - \alpha))$, де α - кут між обраним напрямком, від якого відраховується кут Θ , і напрямком, уздовж якого параметр порядку максимальний. На рис. 1 [3*] наведені усереднені вольт-амперні характеристики тришарової NIS структури з розупорядкованим бар'єрним прошарком, розподіл прозоростей якого описується формулою (1), і надпровідником з s -типом (а) і d -типом спарювання (б), температура вважалася рівною нулю. На вставках до рис. 1 представлені похідні усереднених $I-V$ кривих.

Ідея детальної перевірки формули (1) була запропонована нами і реалізована експериментально співавторами роботи [7*]. Досліджувалась чотиришарова структура Nb/Al-Al₂O₃-Nb, в якій оксидний шар був істотно тоншим, ніж зазвичай в подібних переходах. Температури вимірювань були вище критичної температури переходу алюмінію в надпровідний стан, яка дорівнювала 1.2 К. Одержані дані для температурної залежності відношення опорів в надпровідному і нормальному станах добре узгоджувались з результатами чисельних обчислень для NIS структур з нанорозмірним неоднорідним оксидним прошарком.

В другому розділі роботи показано також, що додаткову інформацію відносно характеру струмоперенесення через розупорядковані ультратонкі шари оксидів можна отримати з досліджень залежності спектральної щільності дробового шуму (флуктуацій напруги і струму, обумовлених дискретністю носіїв електричного заряду) від прикладеної до контакту напруги.

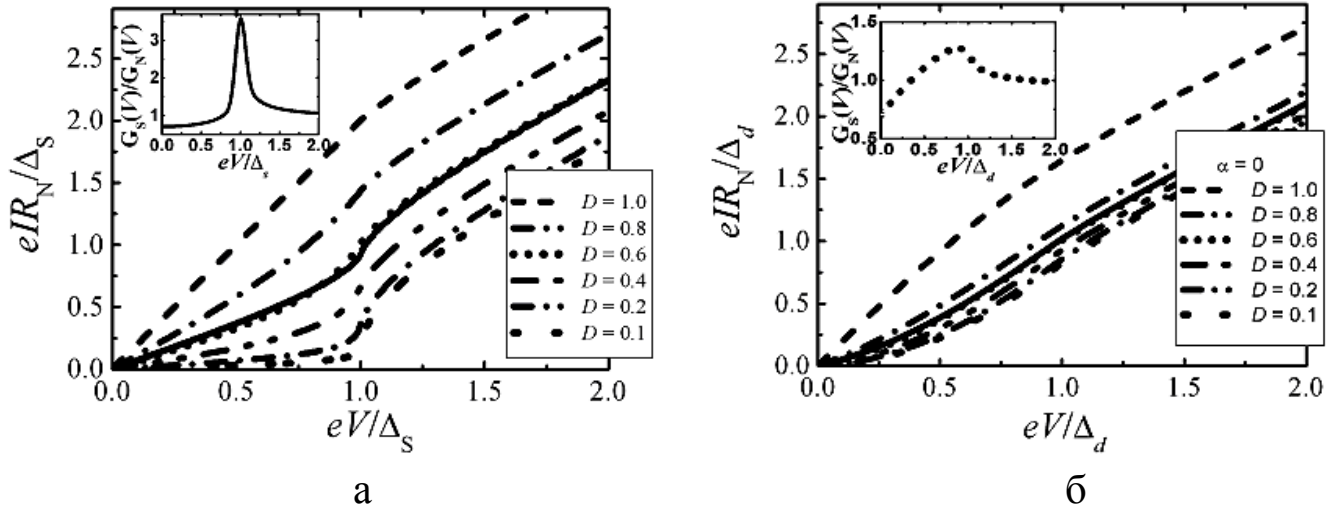


Рис. 1. Вольт-амперні характеристики N-I-S тунельних переходів із надпровідником s -типу (а) і d -типу (б) для різних значень прозорості D ізолюючого I прошарку. Результат усереднення цих кривих за допомогою універсального розподілу (1) показаний суцільною жирною лінією; e - елементарний заряд, R_N - опір в нормальному стані, Δ_s і Δ_d - параметри енергетичної щілини для s - і d -типів спарювання; температура $T = 0$. На вставках наведені залежності диференціальної провідності відповідного тунельного контакту від напруги [3*].

Третій розділ дисертації присвячений аномальним тунельним характеристикам гетероструктур з тонкими шарами оксидів, що містять дефектні центри. Зазвичай вони спостерігаються при збільшенні товщини діелектричного шару, що розділяє два провідника, від значень порядку одного нанометра (ситуація, розглянута в попередньому розділі) до десяти і більше нанометрів. Залежність диференційної провідності такого МІМ зразка від поданої на нього напруги $G(V) = G(0) + \gamma V^n$ ($G(0)$ і γ - константи), однак замість очікуваного значення $n = 2$, яке випливає зі стандартної теорії тунелювання, на практиці отримують зовсім інші значення показника степеня. Оскільки такий ефект, як правило, спостерігався в структурах з неоднорідними оксидними шарами, природно пов'язати його з наявністю в досліджуваних об'єктах локалізованих дефектних центрів, що було підтверджено експериментально. Фактично всередині потенціального бар'єру виникає кілька окремих ділянок, які електрон долає тунельним чином. Через експоненціальну залежність ймовірності електронного тунелювання від відстані l , ширини класично забороненої області, такий стрибковий процес вносить основний вклад в струм через дефектні діелектричні шари. Оскільки енергії окремих локалізованих центрів ε_j можуть суттєво відрізнятися, основним механізмом електронного транспорту з одного дефектного центру на інший (принаймні, при порівняно невеликих

температурах) має бути непружне тунелювання за участю фононів. При цьому втрачається енергія $E \leq \Delta\varepsilon = \varepsilon_1 - \varepsilon_2$, де ε_1 і ε_2 - фіксовані енергії двох електронних станів. Повна ймовірність непружного переходу зі стану 1 в 2 пропорційна $D_{\text{inel}} \propto \exp(-2\kappa l) \int_0^{\Delta\varepsilon} \alpha^2 F(E) dE$, де κ^{-1} - локалізаційна довжина, $\alpha^2 F(E)$ - функція електрон-фононої взаємодії Еліашберга [6], а диференціальна провідність ділянки 1 - 2 при низьких температурах залежить від прикладеної до неї напруги таким чином: $G_{\text{inel}}(V) \propto \exp(-2\kappa l) \cdot \int_0^{e|V|} \alpha^2 F(E) dE$. Звернемо увагу на те, що $G_{\text{inel}}(V)$ - парна функція напруги, тому для того, щоб виділити у вимірній провідності $G(V)$ непружну добавку, необхідно обчислювати парну по напрузі частину $G^{(+)}(V) = [G(V) + G(-V)]/2$, яка і буде обговорюватися надалі.

Припустимо, наприклад, що всередині оксидного бар'єру товщиною d є один прошарок із локалізованих дефектних центрів, відстань яких l від одного з електродів флюктує. Для пружних процесів функція $G_{\text{el}}^{(+)}(V) \propto \exp(-2\kappa(d-l))$ буде квадратичною внаслідок слабкої залежності $\kappa(V)$ [6]. Якщо ж один з двох стрибків є непружним, і його ймовірність описується формулою для $G_{\text{inel}}(V)$, а другий - пружним з ймовірністю, пропорційною $\exp(-2\kappa(d-l))$, тоді сумарний опір буде залежати від виду функції $\alpha^2 F(E)$. Його мінімальне значення досягається в тому випадку, коли ймовірності двох процесів збігаються [12]. Прирівнюючи їх, знаходимо умову, яка визначає значення, що відповідають максимальному внеску в тунельний струм

$$D^{\text{max}}(\Delta\varepsilon) \propto \exp(-2\kappa(d/2)) \left(\int_0^{\Delta\varepsilon} \alpha^2 F(E) dE \right)^{1/2}. \text{ Множник } d/2 \text{ в експоненті відображає}$$

той факт, що електрон проходить дві ділянки всередині потенціального бар'єру, а не тунелює безпосередньо з одного металевого електрода в інший. Сумарний непружний внесок у $G_{\text{inel}}^{(+)}(V)$ можна знайти, проінтегрувавши $D^{\text{max}}(\Delta\varepsilon)$ по $\Delta\varepsilon$ від нуля до eV .

$$\text{Відповідно, } G_{\text{inel}}^{(+)}(V) \propto \exp(-\kappa d) \int_0^{e|V|} \left(\int_0^{\varepsilon} \alpha^2 F(E) dE \right)^{1/2} d\varepsilon. \text{ Таким же чином можуть бути}$$

розглянуті і більш складні ситуації, зокрема, струмоперенесення через два дефектних центра з непружним тунелюванням між ними (саме ця ситуація була досліджена раніше в роботі [12] в рамках дебаївського наближення для залежності частоти фононного збудження від хвильового вектора). В останньому випадку

$$G_{\text{inel}}^{(+)}(V) \propto \exp\left(-\frac{2}{3}\kappa d\right) \int_0^{e|V|} \left(\int_0^{\varepsilon} \alpha^2 F(E) dE \right)^{1/3} d\varepsilon. \text{ Подальше завдання полягає в}$$

знаходженні функції Еліашберга $\alpha^2 F(E)$ або її адекватної апроксимації. Для багатокомпонентних матеріалів, зокрема, складних оксидів перехідних металів,

функція $\alpha^2 F(E)$ за межами дебаївського наближення мало змінюється з енергією E і при не надто малих E може бути апроксимована константою (див., наприклад, дані для сполуки $\text{La}_{5/8}\text{Ca}_{3/8}\text{MnO}_3$ [13]). Тоді для двох розглянутих вище випадків ми маємо $G_{\text{inel}}^{(+)}(V) \propto V^{3/2}$ і $G_{\text{inel}}^{(+)}(V) \propto V^{4/3}$. Останній результат в точності відповідає залежності, одержаній в роботі [12]. Підкреслимо, що висновки для двох принципово різних наближень $\alpha^2 F(E)$ збігаються тільки у разі описаної вище конфігурації з двома дефектними станами. В інших випадках, коли досліджується область порівняно великих енергій, де дебаївський закон дисперсії для фононів є неприйнятним, слід використовувати загальні вирази з довільною функцією електрон-фононної взаємодії.

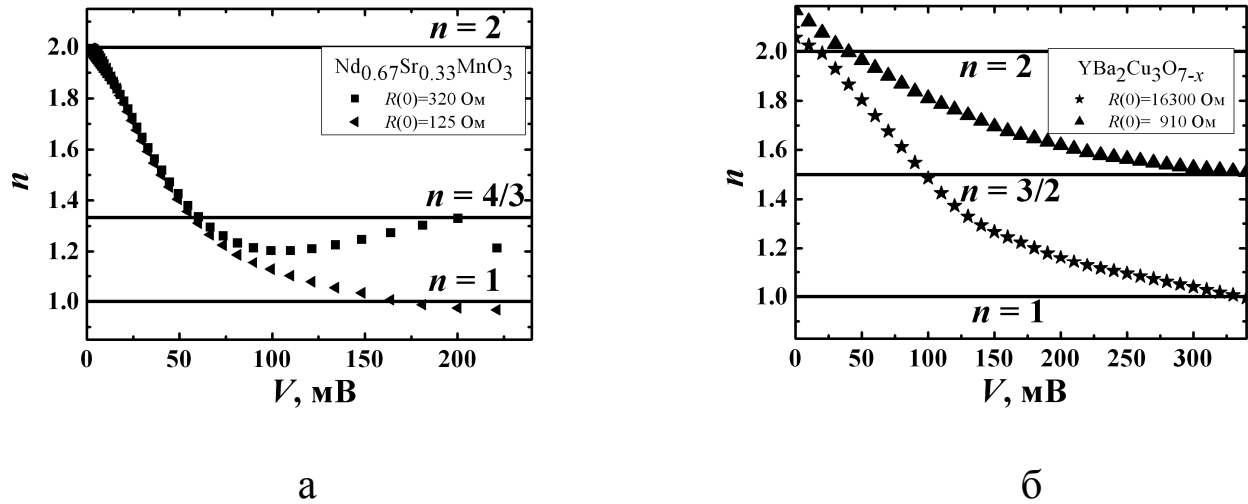


Рис. 2. Залежності показника степеня n від V для контактів з манганітом $\text{Nd}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ [8] ($T = 77$ K) (а) і купратом $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-c}$ [9*] (б) до і після застосування негативного імпульсу величиною близько одного вольту, в результаті чого опір в нулі напружень істотно зменшився [4*].

На основі даної теорії нами [4*] був запропонований новий метод аналізу приповерхневої мікроструктури складних оксидів. Він полягає в знаходженні показника степеня n в залежності диференціальної провідності тунельних переходів від напруги, що характеризує число локалізованих станів всередині бар'єру, залучених до транспортного процесу. Наведені на рис. 2 приклади залежностей n від V демонструють, що в контакті з $\text{Nd}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ менший опір відповідає непружному тунелюванню з одного металевого електрода в іншій, коли $n = 1$, а більший – бар'єру з двома дефектними шарами ($n = 4/3$), в той час як в контакті з $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-c}$ струмоперенесення у стані з більшим опором відбувається завдяки непружному тунелюванню без проміжних локалізованих станів ($n = 1$), а у стані з меншим опором в бар'єрі існує лише один дефектний шар ($n = 3/2$).

У цьому розділі роботи розраховані також струмові флуктуації в тунельних структурах нормальний метал – двобар'єрний прошарок з дефектними центрами –

надпровідник і показано, що вимірювання дробового шуму в них можуть служити ефективним засобом виявлення і дослідження ефектів декогеренції в них [5*].

В четвертому розділі, на відміну від попередніх двох, де дефекти в ізолюючому прошарку вважалися нерухомими, досліджується вплив електроміграції заряджених дефектів на електричні властивості тонких неоднорідних оксидних плівок. Для того, щоб порівняти висновки теоретичної моделі з експериментом, розглянемо детально процеси, що відбуваються в підсистемі кисневих вакансій плівки ітрій-барієвого купрата $YBa_2Cu_3O_{7-c}$ ($0 \leq c \leq 1$), орієнтованої в напрямку вісі c . Саме для такої орієнтації існує наближена формула, яка визначає залежність питомого опору ρ зразка від концентрації кисневих вакансій c : $\rho(c) = \rho_0 \exp(c/c_0)$, де емпіричний параметр $c_0 \sim 0.2$ [14]. Будемо вважати, що розподіл вакансій є неоднорідним вже в початковий момент (на що однозначно вказує експеримент [15]) і залишається таким, міняючись в просторі і в часі, після подачі на контакт металу з YBCO змінного електричного поля. При цьому ми обмежимося одновимірною моделлю і припустимо, що локальне значення питомого опору $\rho(x,t)$ однозначно визначається локальною величиною $c(x,t)$. Відповідно буде змінюватися в часі і повний опір оксидної плівки товщиною L $R(t) = \int_0^L \rho(x,t) dx$. Еволюція концентрації вакансій кисню в матеріалі

$c(x,t)$ описується рівнянням безперервності $\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial J(x,t)}{\partial x} = 0$ з

$J(x,t) = 2avc(x,t) \exp(-U/k_B T) \text{sh}(qaE(x,t)/k_B T)$. Потік вакансій $J(x,t)$ залежить від a , параметра кристалічної решітки, v , частоти спроб подолати бар'єр U , q , заряду вакансії та E , локальної напруженості електричного поля. Рівняння безперервності ми доповнюємо релаксаційним доданком, який описує тенденцію повернення нерівноважного розподілу вакансій в початковий стан з концентрацією $c_{in}(x)$, та одержуємо в результаті таке диференціальне рівняння

$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} + 2av \exp(-U/k_B T) \frac{\partial}{\partial x} (c(x,t) \text{sh}(qaE(x,t)/k_B T)) = -\frac{c(x,t) - c_{in}(x)}{\tau}. \quad (2)$$

В формулі (2) τ - час релаксації, а необхідна для вирішення початкова умова має вигляд $c(x,t=0) = c_{in}(x)$. Що стосується граничної умови для $c(x,t)$, то вона визначається фізичними параметрами на протилежній інтерфейсу поверхні YBCO з координатою $x = 0$. Якщо товщина YBCO плівки L набагато перевищує нанометрові розміри, тоді концентрація $c(x \rightarrow 0, t)$ практично не змінюється з часом і може бути визначена, виходячи з фізичних характеристик зразка. В експериментах, виконаних нашими співавторами [6*, 9*], YBCO плівки переходили в надпровідний стан приблизно при 90 К. Це означає, що концентрація вакансій в них, в основному, була близька до оптимальної. Тому в наших розрахунках, результати яких порівнювалися

потім з даними вимірювань, гранична умова мала вигляд $c(x=0,t) \equiv 0.24$. Зауважимо, що в експериментах [6*, 9*] використовувалось джерело струму $I(t)$. Це означає, що локальні значення напруженості електричного поля $E(x,t)$ залежали від локальних значень питомого опору (опору зразка, перерахованого на одиницю довжини) $E(x,t) = \rho(x,t)I(t)$. Таким чином, рівняння (2) являє собою нелінійне диференціальне рівняння з частинними похідними, яке необхідно було вирішувати при заданій функції $I(t)$, яка імітує відповідну експериментальну залежність, та при початковій $c(x,t=0) = c_{in}(x)$ і граничній $c(x=0,t) \equiv \text{const}$ умовах.

На рис. 3 наведена I - V крива контакту металу з ітрій-барієвим купратом і зміна концентрації кисневих вакансій в часі та просторі. Передбачалося, що релаксація просторового розподілу вакансій до $c_{in}(x)$ відбувається за часи, величезні в порівнянні з періодом $I(t)$.

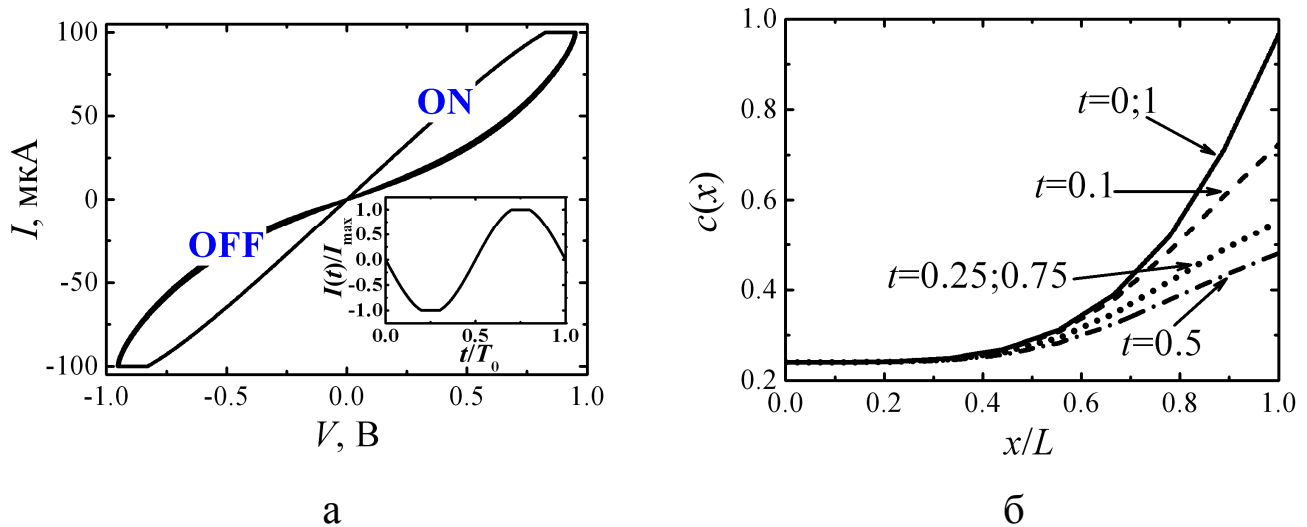


Рис. 3. Вольт-амперна крива контакту Ag із c -орієнтованою плівкою YBCO (а) і просторово-неоднорідна концентрація вакансій $c(x)$ ітрій-барієвого купрату в різні моменти часу t (б). Час релаксації системи до рівноважного стану $\tau/T_0 = 1000$, опір $\rho_0 L = 1500$ Ом, період поданого струму $T_0 = 10^3$ с, його максимальне значення $I_{\max} = 100$ мкА.

Наша модель резистивних перемикачів в контактах зі складними оксидами перехідних металів виходить з припущення про зміну розподілу кисневих вакансій під дією зовнішнього поля (див. рис. 3б) і, як результат, зміни опору приконтатної області. Як було показано нами у другому та третьому розділі, зміна ефективної товщини розупорядкованого нанорозмірного діелектричного прошарку між двома металами повинна призводити до зміни диференціальної провідності тунельної структури, найбільш помітної в надпровідному стані. Така додаткова перевірка

моделі була виконана за допомогою низькотемпературних вимірювань диференційної провідності Ag/YBCO контактів в нашій роботі [9*]. У низькорезистивному стані ON на тлі швидко зростаючої провідності виразно спостерігалася особливість, пов'язана з енергетичною щільною надпровідного ітрій-барієвого купрату, що дорівнює приблизно 20 меВ [9*]. Навпаки, в OFF стані, де, як ми вважаємо, виникає досить широкий потенційний бар'єр, ніяких слідів надпровідного стану не було. Підгонка експериментальної залежності $G(V)$ під степеневу функцію методом найменших квадратів показала, що в даному випадку $G(V) \propto |V|$. Згідно з результатами третього розділу це означає, що тунелювання електронів в високорезистивному стані є, головним чином, непружним з випусканням фононних збуджень.

Ще одна перевірка запропонованої моделі була реалізована в роботі [6*]. Як відомо, коефіцієнт дифузії D кисневих вакансій в YBCO істотно залежить від кристалографічного напрямку, і відношення D_{ab}/D_c в площині ab і уздовж осі c зазвичай перевершує 10^3 . Тому для зарядового транспорту в ab -площині можна очікувати, що після перемикавання з OFF в ON і зменшення абсолютної величини електричного поля до нуля система може повернутися до вихідної концентрації вакансій $c_{in}(x)$ вже при малих (негативних по знаку) напругах зсуву. Більш того, саме розподіл $c_{in}(x)$ має радикально відрізнитися від такого для транспорту уздовж осі c , оскільки через високу рухливість іонів кисню в площині ab концентрація вакансій повинна істотно перевищувати таку для контакту вздовж осі c . Іншими словами, значення $c_{in}(x)$ мають бути близькими до одиниці на досить великих відстанях від інтерфейсу, тобто після повернення в початковий стан при малих по величині, але негативних за знаком напругах система буде залишатися в високорезистивному стані і при позитивних V . Це припущення було підтверджено експериментами наших співавторів в роботі [6*].

П'ятий розділ присвячений дослідженню нерівноважних ефектів в тунельних контактах ферромагнітний метал (F) – ізолятор - надпровідник (S) з досить тонким оксидним прошарком. Вище ми вважали, що функції розподілу електронних станів в обкладинках МІМ тунельного переходу не залежать від інтенсивності тунельного струму і не відрізняються від рівноважного розподілу Фермі-Дірака $f(\varepsilon)$. Порівняємо далі характерні часи релаксації по енергії τ_ε і по спіну τ_{sf} з середнім проміжком $\tau_T^{(\varepsilon, sf)}$ між двома послідовними процесами електронного тунелювання в ту частину площини тунельного контакту, в якій ця частинка може опинитися за час $\tau_{\varepsilon, sf}$: $\tau_T^{(\varepsilon, sf)} = e / \left(I \cdot \left(S_{\varepsilon, sf} / A \right) \right)$, де I – тунельний струм, A – площа переходу, $S_{\varepsilon, sf} = l_{\varepsilon, sf}^2$, $l_{\varepsilon, sf}$ - шлях, який проходить електрон після процесу тунелювання до моменту релаксації (по енергії або по спіну). Рівноважний розподіл електронів по енергії (по спіну) буде встигати відновлюватися в металевому електроді в тому випадку, коли $\tau_T^{(\varepsilon, sf)} > \tau_\varepsilon (\tau_{sf})$. У даній роботі відповідні оцінки були виконані для

контактів надпровідного свинцю з оловом і феромагнітним сплавом Гейслера Co_2CrAl , опір яких був вимірний нашими співавторами в публікаціях [2*, 10*]. З'ясувалось, що в обох випадках рівновага по енергії в електронній підсистемі відновлюється повністю в проміжку між двома послідовними процесами тунелювання заряду, у той час як інтенсивність спінової релаксації в Pb при 4.2 К, температурі експерименту, є дуже низькою у порівнянні з тунельними процесами. Оскільки в нашому випадку товщини плівок свинцю (приблизно 10^{-7} м) були набагато меншими, ніж характерна довжина l_{sf} (10^{-6} - 10^{-5} м), то на шляху від однієї границі надпровідника до іншої електрон не встигав перевернути свій спіні. І в той же час мала місце нерівність $\tau_{sf} \gg \tau_T^{(sf)}$. Вирішити це протиріччя можна тільки за умови відсутності спінового струму між F і S шарами, тобто нехтовно малої різниці між кількістю електронів зі спіном вгору і спіном вниз, що проходять в одиницю часу крізь F-S інтерфейс.

Ця умова може бути реалізована в FIS тунельному контакті, якщо нерівноважні розподіли електронів з різними спінами $g_s(\varepsilon)$ і $g_{-s}(\varepsilon)$ відрізняються один від одного. Тут і далі спінові індекси s приймають значення $+1(\uparrow)$ і $-1(\downarrow)$. Тоді для густини повного зарядового струму маємо

$$J(V) = \sum_s C_s \int_0^\infty d\varepsilon \cdot D(\varepsilon, Z) [f(\varepsilon - eV) - g_s(\varepsilon) + g_{-s}(\varepsilon) - f(\varepsilon + eV)], \quad (3)$$

а для спінового струму

$$J_s(V) = \sum_s s C_s \int_0^\infty d\varepsilon \cdot D(\varepsilon, Z) [f(\varepsilon - eV) - g_s(\varepsilon) + g_{-s}(\varepsilon) - f(\varepsilon + eV)]. \quad (4)$$

C_\uparrow і C_\downarrow - відповідні коефіцієнти із співвідношенням $C_\uparrow / C_\downarrow = N_\uparrow^{(F)}(0) / N_\downarrow^{(F)}(0)$, $N_{\uparrow(\downarrow)}^{(F)}(0)$ - щільності електронних станів з різними спінами у феромагнітному інжекторі, в якому ступінь спінової поляризації електронів провідності $P = \frac{N_\uparrow^{(F)}(0) - N_\downarrow^{(F)}(0)}{N_\uparrow^{(F)}(0) + N_\downarrow^{(F)}(0)} = \frac{C_\uparrow - C_\downarrow}{C_\uparrow + C_\downarrow}$.

Оскільки кількість електронів зі спіном вгору, які з'явилися в надпровіднику внаслідок процесу тунелювання, істотно перевищує кількість електронів зі спіном вниз, природно припустити, що в S плівці виникає розсунення $\delta\mu$ хімічних потенціалів електронних підзон з протилежними напрямками спінів $\mu_{\uparrow(\downarrow)} = \mu_s \pm \delta\mu$, де μ_s - хімічний потенціал надпровідного електроду за відсутністю струму інжекції [16].

При цьому вважається, що самі нерівноважні функції $g(\varepsilon)$ однорідні всередині надпровідника і мають той же аналітичний вигляд, що і ферміївські функції $f(\varepsilon)$.

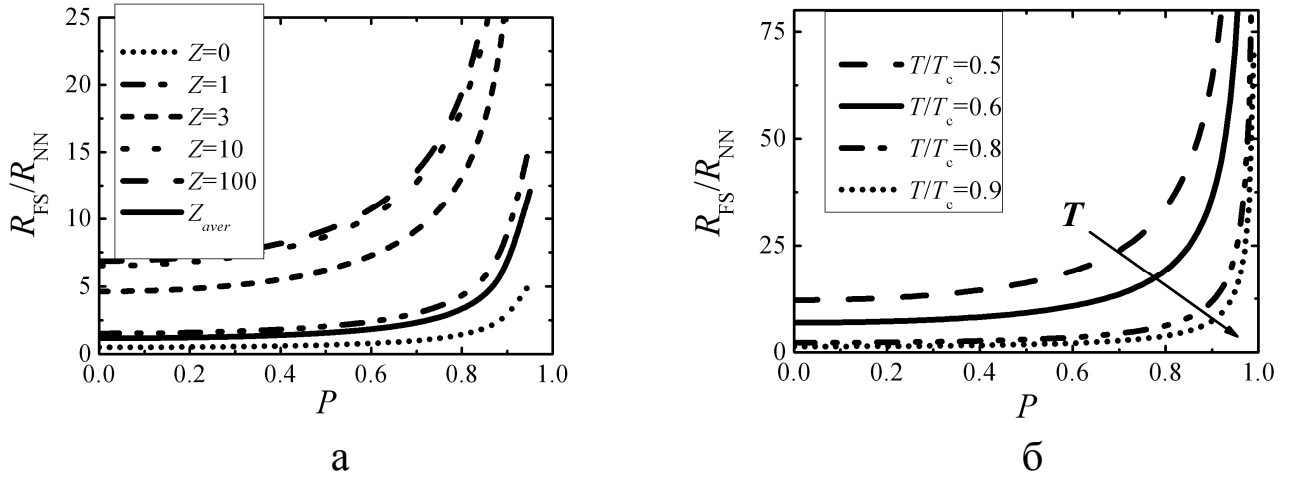


Рис. 4. Залежності відношення опорів ФІМ тунельного контакту в надпровідному (s -хвильове упорядкування) і нормальному станах від ступеня P спінової поляризації електронів провідності в F інжекторі для різних параметрів Z бар'єру при $T = 0.6T_c$ (а) і від температури T для $D = 1/(1 + Z^2) \rightarrow 0$ (б). Суцільна лінія на рис. 4а відповідає універсальному розподілу (1); T_c - критична температура надпровідника [11*].

Якщо напруги V дуже малі в порівнянні з енергетичною щільною Δ надпровідного електроду s -типу, тоді залежність струму від напруги можна вважати лінійною. Введемо функцію $\chi(T, Z) = 2 \int_0^{\infty} D(\varepsilon, Z) (-\partial f(\varepsilon) / \partial \varepsilon) d\varepsilon$, яка є функцією T і ефективності бар'єру Z . З вимоги $I_s = (C_{\uparrow} - C_{\downarrow})\chi(T, Z)eV - (C_{\uparrow} + C_{\downarrow})\chi(T, Z)\delta\mu \equiv 0$ випливає, що $\delta\mu = eV(C_{\uparrow} - C_{\downarrow}) / (C_{\uparrow} + C_{\downarrow})$, звідки знаходимо величину тунельного струму з ферромагнітного металу в надпровідник $I_{FS}(V) = 4\chi(T, Z)eVC_{\uparrow}C_{\downarrow} / (C_{\uparrow} + C_{\downarrow})$. В нормальному стані $I_{NN} = (C_{\uparrow} + C_{\downarrow})eV$. Тоді для відношення опорів ФІМ тунельного контакту в надпровідному ($M=S$) і нормальному ($M=N$) станах маємо

$$\frac{R_{FS}}{R_{NN}}(T) = \frac{1}{(1 - P^2)\chi(T, Z)}. \quad (5)$$

Формула (5) і є основним теоретичним результатом даної глави, оскільки дозволяє з вимірів відношення R_{FS}/R_{NN} при заданій температурі T визначити спінову поляризацію P електронів провідності в феромагнітному електроді. Зауважимо, що в разі $P \leq 1$ знаменник в (5) є дуже малою величиною, і незалежно від величини Z відношення R_{FS}/R_{NN} буде вищим за таку ж характеристику R_{NS}/R_{NN} для немагнітного інжектора. Цей висновок ілюструє рис. 4, дані якого добре узгоджується з експериментальними результатами співавторів з Інституту металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАНУ (м. Київ), наведеними в роботах [2*, 10*].

В **висновках** до дисертації сформульовані загальні положення дисертаційної роботи, що виносяться на захист.

ВИСНОВКИ

1. Розроблено загальний підхід до розрахунку транспортних характеристик гетероструктур з нанорозмірними розупорядкованими плівками ізолятора, що базується на врахуванні ефектів пружного та непружного тунелювання. Показано, що в оксидних шарах товщиною декілька атомних шарів (близько одного нанометра) функція розподілу ймовірності електронного переносу є універсальною, тобто не залежить від їх мікроскопічних параметрів. Аналіз непружної компоненти струмоперенесення через неоднорідні діелектричні шари з дефектними центрами дозволив пояснити аномальну (з нецілим показником степеня) залежність диференціальної провідності контакту метал - ізолятор - метал від напруги. Вперше теоретично досліджено вплив ефектів декогеренції на потужність дробового шуму двобар'єрної гетероструктури із надпровідним електродом.

2. Запропоновані контрольні експерименти з перевірки універсальності функції розподілу прозоростей надтонких оксидних шарів, які були реалізовані експериментально співавторами з Інституту метрологічних досліджень (Турін, Італія) на надпровідних Nb/Al-Al₂O₃-Nb переходах з Al₂O₃ прошарком товщиною 1 нм. Результати вимірювань при температурах 1.7, 4.2 і 6.1 К добре узгоджуються з даними наших теоретичних розрахунків. Розвинений новий метод аналізу приповерхневої мікроструктури складних оксидів, який базується на визначенні показника степеня в залежності диференціальної провідності тунельних контактів від напруги. Показано, що вимірювання дробового шуму в тунельних структурах нормальний метал - ізолятор - надпровідник з дефектними центрами всередині бар'єрного прошарку можуть бути ефективним методом виявлення і дослідження ефектів декогеренції в таких об'єктах.

3. Розроблено теоретичну модель резистивних перемикачів в тонких оксидних шарах. Зокрема, показано, що в гетероконтактах на основі ітрій-барієвого купрату ці явища відбуваються в нанорозмірній області поблизу інтерфейсу складного оксиду з металевим інжектором, локальна мікроструктура якої змінюється в результаті зміни концентрації кисневих вакансій в просторі і в часі під дією зовнішніх електричних

полів. Добра узгодженість теоретичних і вимірних вольт-амперних характеристик контактів на основі плівок ітрій-барієвого купрату, орієнтованих в напрямку c -вісі, вказує на адекватність моделі, в якій основним чинником є електроміграція кисневих вакансій в оксидних матеріалах. Запропонована і реалізована на практиці співавторами з Університету ім. Я. Коменського (Братислава, Словаччина) додаткова перевірка даної моделі з використанням анізотропії властивостей ітрій-барієвого купрату, а також виміри низькотемпературної диференціальної провідності контактів Ag/YBCO підтвердили справедливість теоретичної моделі.

4. Досліджено ефекти спінової інжекції в тунельних контактах феромагнітного металу з надпровідником, товщина якого мала в порівнянні з довжиною, на якій відбувається переверт електронного спіну. Розвинута теорія нерівноважного (по спіну) стану в електронній підсистемі надпровідного шару, відповідно до якої з ростом поляризації електронів провідності в феромагнітному інжекторі відбувається зростання диференціального опору тунельного переходу феромагнетик - ізолятор - надпровідник. Цей ефект, на основі якого запропоновано новий метод визначення величини спінової поляризації електронів провідності в феромагнітному металі, був виявлений експериментально співавторами з Інституту металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАНУ (м. Київ).

Список цитованої літератури

- [1] The missing memristor found / D. B. Strukov, G. S. Snider, D. R. Stewart [et al.] // Nature. – 2008. – V. 453, № 7191. – P. 80-83.
- [2] Kirtley J. R. Tunneling measurements of the energy gap in high- T_c superconductors / J. R. Kirtley // International Journal of Modern Physics B. - 1990. – V. 4, № 2. - P. 201-237.
- [3] Kingon A. I. Alternative dielectrics to silicon dioxide for memory and logic devices / A. I. Kingon, J.-P. Maria, S. K. Streiffer // Nature. - 2000. - V. 406, № 6799. - P. 1032–1038.
- [4] Nb/Al-AlO_x-Nb superconducting heterostructures: A promising class of self-shunted Josephson junctions/ V. Lacquaniti, N. De Leo, M. Fretto [et al.] // Journal of Applied Physics. – 2010. – V. 108, № 9. - P. 093701-1 – 093701-8.
- [5] European roadmap on superconductive electronics – status and perspectives / S. Anders, M. G. Blamire, F.-Im. Buchholz [et al.] // Physica C: Superconductivity. – 2010. – V. 470, № 23-24. – P. 2079-2126.
- [6] Свистунов В. М. Туннельная спектроскопия квазичастичных возбуждений в металлах / В. М. Свистунов, М. А. Белоголовский. – К.: Наук. думка, 1986. – 152 с.
- [7] $1/f$ noise in magnetic tunnel junctions with MgO tunnel barriers / A. Gokse, E. R. Nowak, S. H. Yang [et al.] // Journal of Applied Physics. – 2006. - V. 99, № 13. - P. 08A906-1 – 08A906-3.
- [8] Tunneling spectroscopy of manganites with nanoscale structural nonuniformities / V. M. Svistunov, V. N. Leonova, M. A. Belogolovskii [et al.] // Modern Physics Letters B. – 2008. - V. 22, № 29. - P. 2811-2819.

- [9] Krivoruchko V. N. Inhomogeneous magnetism induced in a superconductor at a superconductor-ferromagnet interface / V. N. Krivoruchko, E. A. Koshina // *Physical Review B*. – 2002. – V. 66, № 1. - P. 014521-1 - 014521-6.
- [10] Schep K. M. Universality of transport through dirty interfaces / K. M. Schep and G. E. W. Bauer // *Physical Review Letters*. – 1997. - V. 78, № 15. - P. 3015–3018.
- [11] Phase-coherent charge transport in superconducting heterocontacts / M. Belogolovskii, M. Grajcar, P. Kúš [et al.] // *Physical Review B*. – 1999. - V. 59, № 14. - P. 9617–9626.
- [12] Глазман Л. И. Неупругое туннелирование через тонкие аморфные пленки / Л. И. Глазман, К. А. Матвеев // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. - 1988. - V. 94, № 6. - P. 332-343.
- [13] First-order nature of the ferromagnetic phase transition in (La-Ca)MnO₃ near optimal doping / C. P. Adams, J. W. Lynn, V. N. Smolyaninova [et al.] // *Physical Review B*. -2004. - V. 70, № 13. – P. 134414-1 - 134414-12.
- [14] Oxidation kinetics of YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films in the presence of atomic oxygen and molecular oxygen by *in-situ* resistivity measurements / K. Yamamoto, B. M. Lairson, J. C. Bravman [et al.] // *Journal of Applied Physics*. – 1991. - V. 69, № 10. - P. 7189-7201.
- [15] Investigation of HTS surface properties by tunneling spectroscopy / A. Plecenik, M. Grajcar, P. Seidel [et al.] // *Studies of High Temperature Superconductors*, ed. by A. Narlikar. – New York: Nova Science Publisher, 1996. - V. 20. - P. 76-124.
- [16] Owen C. S. Superconducting state under the influence of external dynamic pair breaking / C. S. Owen, D. J. Scalapino // *Physical Review Letters*. – 1972. – V. 28, № 24. - P. 1559-1561.

Список опублікованих праць за темою дисертації

- 1*. Эффект резистивных переключений вблизи границы металл-перовскитный оксид / В. В. Пермяков, М. А. Москаленко, Ю. Ф. Ревенко, И. В. Бойло // *Вісник Донецького університету, сер. А: Природничі науки*. – 2008. - № 2. – С. 197-199.
- 2*. Спиновая инжекция и эффект гигантской блокировки туннельного тока в гетероструктурах ферромагнетик–сверхпроводник / Э. М. Руденко, И. В. Короташ, Ю. В. Кудрявцев, А. А. Краковный, М. А. Белоголовский, И. В. Бойло // *Физика низких температур*. – 2010. – Т. 36, № 2. – С. 234-237.
- 3*. Белоголовский М. А. Универсальный характер туннельной проводимости гетероструктур металл-изолятор-металл с наноразмерными оксидными прослойками / М. А. Белоголовский, И. В. Бойло, В. Е. Шатерник // *Успехи физики металлов*. – 2011. – Т. 12, № 2. – С. 157-182.
- 4*. Бойло И. В. Анализ дефектной структуры приповерхностных слоев проводящих материалов с помощью эффекта электронного туннелирования / И. В. Бойло, М. А. Белоголовский // *Письма в Журнал технической физики*. – 2012. – Т. 38, № 4. – С. 76-82.
- 5*. Свистунов В. М. Транспортные характеристики туннельных гетероструктур: переход от квантового к классическому пределу / В. М. Свистунов, И. В. Бойло,

- М. А. Белоголовский // Физика низких температур. – 2012. – Т. 38, № 4. – С. 440-445.
- 6*. Effect of crystallographic anisotropy on the resistance switching phenomenon in perovskites / T. Plecenik, M. Tomášek, M. Belogolovskii, M. Truchly, M. Gregor, J. Noskovič, M. Zahoran, T. Roch, I. Boylo, M. Španková, Š. Chromik, P. Kúš, A. Plecenik // Journal of Applied Physics. – 2012. – V. 111, № 5. – P. 056106-1 - 056106-3.
- 7*. Advanced four-layered Josephson junctions for digital applications / V. Lacquaniti, N. De Leo, M. Fretto, A. Sosso, I. Boilo, M. Belogolovskii // Physics Procedia. - 2012. – V. 36. - P. 100-104.
- 8*. Current blockade in spin-dependent tunneling across ferromagnet-superconductor junctions / E. Rudenko, M. Belogolovskii, I. Boylo, I. Korotash, Yu. Kudryavtsev // German-Ukrainian Symposium on Nanoscience and Nanotechnology 2008, 22-25.09.2008: Abstracts. - Essen, Germany, 2008. – P. 107.
- 9*. Resistance switching mechanism in yttrium-based cuprate films / S. Yu. Larkin, I. V. Boylo, M. A. Belogolovskii, T. Plecenik, M. Tomášek, M. Gregor, J. Noskovic, M. Zahoran, T. Roch, P. Kúš, A. Plecenik, M. A. Moskalenko, M. Španková, Š. Chromik // 17th International Symposium “Nanostructures: Physics and Technology”, 22-26.06.2009: Proceedings. - Minsk, Belarus, 2009. – P. 272-273.
- 10*. Spin injection in ferromagnetic – superconductor heterostructures / A. A. Krakovny, I. V. Boylo, M. V. Dyakin, D. S. Shchypstov // International Conference “Functional materials (ICFM’2009)”, 05-10.10.2009: Abstracts. – Парте́ніт, Україна, 2009. – P. 132.
- 11*. Бойло И. В. Кинетика электронного транспорта в структурах ферромагнитный металл-изолятор-сверхпроводник / И. В. Бойло // Международная научная конференция “Химическая термодинамика и кинетика”, 12-14.09.2012. Сборник докладов. - Донецк, Украина, 2012. – С. 18-20.

АНОТАЦІЯ

Бойло І.В. Струмоперенесення в тунельних структурах з неоднорідними оксидними шарами. – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико–математичних наук за спеціальністю 01.04.07 – фізика твердого тіла. – Донецький фізико–технічний інститут ім. О.О. Галкіна, Національна академія наук України, Донецьк, 2012.

Дисертаційна робота присвячена дослідженню фізичних механізмів протікання зарядового і спінового струмів в гетероструктурах з нанорозмірними оксидними прошарками в залежності від їх дефектності, просторової неоднорідності та

специфіки електронного впорядкування в металевих електродах. Для цього були вирішені наступні завдання: (а) розвинено загальний теоретичний підхід до розрахунку транспортних характеристик гетероструктур з нанорозмірними розупорядкованими плівками ізолятора, що базується на врахуванні ефектів пружного та непружного тунелювання крізь неоднорідні потенціальні бар'єри; (б) виконані розрахунки вольт-амперних характеристик і дробового шуму в тунельних структурах з дефектними центрами всередині бар'єрного прошарку та запропонована нова методика аналізу приповерхневої мікроструктури складних оксидів; (в) досліджена еволюція дефектної структури поблизу границі розподілу металевого інжектора з поверхнею складного оксиду під дією зовнішніх електричних полів і з'ясована природа резистивних перемикачів в таких системах; (г) вивчено вплив ефектів нерівноважності на процеси струмоперенесення з феромагнітного металу в надпровідникову плівку крізь оксидні шари високої прозорості та розроблено новий метод визначення величини спінової поляризації електронів в магнітному електроді. Одержані теоретичні результати добре узгоджуються з відповідними експериментальними даними, що вказує на адекватність запропонованих моделей.

Ключові слова: квантово-механічне тунелювання, гетероструктури, нанорозмірні оксидні шари, дефектна структура, електричні характеристики, резистивні перемикачів, спінова інжекція.

АННОТАЦИЯ

Бойло И.В. Токоперенос в туннельных структурах с неоднородными оксидными слоями. – Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика твердого тела. – Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина, Национальная академия наук Украины, Донецк, 2012.

Диссертационная работа посвящена исследованию физических механизмов протекания зарядового и спинового токов в гетероструктурах с наноразмерными оксидными прослойками в зависимости от дефектности и пространственной неоднородности оксидов, а также специфики электронного упорядочения в металлических электродах. Для этого были решены следующие задачи: (а) развит общий теоретический подход к расчету транспортных характеристик гетероструктур с наноразмерными разупорядоченными пленками изолятора, основанный на учете эффектов упругого и неупругого туннелирования сквозь неоднородные потенциальные барьеры; (б) выполнены расчеты вольт-амперных характеристик и дробового шума в туннельных структурах с дефектными центрами внутри барьерной

прослойки, и предложена новая методика анализа приповерхностной микроструктуры сложных оксидов; (в) исследована эволюция дефектной структуры вблизи границы раздела металлического инжектора с поверхностью сложного оксида переходных металлов под действием внешних электрических полей и выяснена природа резистивных переключений в таких системах; (г) изучено влияние эффектов неравновесности на процессы токопереноса из ферромагнитного металла в сверхпроводящую пленку сквозь оксидные слои высокой прозрачности и предложен новый метод определения величины спиновой поляризации электронов проводимости в магнитном электроде.

Первая глава работы представляет собой аналитический обзор имеющихся литературных данных, где сформулированы нерешенные проблемы и задачи данного исследования. Во второй главе проанализирован процесс токопереноса в контактах металл – изолятор – металл с разупорядоченными пленками изолятора толщиной порядка нескольких межатомных расстояний и большим числом упруго рассеивающих центров. Показано, что в таких слоях функция распределения вероятности электронного переноса универсальна, то есть не зависит от микроскопических параметров оксидов. Рассчитаны вольт-амперные характеристики и токовые флуктуации в гетероструктурах со сверхпроводящим электродом.

В третьей главе рассмотрена задача туннелирования через наноразмерные оксидные пленки с дефектными центрами внутри них. Анализ неупругой компоненты транспортного тока через такие слои позволил объяснить аномальную (с нецелым показателем степени) зависимость дифференциальной проводимости контакта металл - изолятор - металл от напряжения. Теоретически исследовано влияние эффектов сбой квантово-механической фазы на интенсивность дробового шума в двухбарьерной гетероструктуре. Показано, что измерения токовых флуктуаций в туннельных переходах нормальный металл – дефектная прослойка - сверхпроводник являются эффективным методом обнаружения и изучения явления декогеренции в таких объектах.

В четвертой главе диссертации разработана теоретическая модель резистивных переключений в тонких оксидных слоях. В частности, показано, что в гетероконтактах на основе иттрий-бариевого купрата эти явления происходят в наноразмерной области вблизи контакта сложного оксида с металлическим инжектором, локальная микроструктура которой меняется в результате изменения концентрации кислородных вакансий в пространстве и во времени под действием внешних переменных электрических полей. Адекватность предложенной модели, в которой основным фактором является электромиграция кислородных вакансий в оксидных материалах, подтверждается экспериментами, выполненными соавторами из Университета им. Я. Коменского (Братислава, Словакия).

Пятая глава посвящена эффекту спиновой инжекции в туннельных контактах ферромагнитного металла со сверхпроводящей пленкой, толщина которой мала по сравнению с длиной, на которой происходит переворот электронного спина. Предложена теория неравновесного (по спину) состояния в электронной подсистеме

такого сверхпроводника, согласно которой рост спиновой поляризации электронов проводимости в ферромагнитном инжекторе приводит к увеличению дифференциального сопротивления туннельного перехода ферромагнетик – тонкий оксид – сверхпроводник. Этот эффект, на основе которого был предложен новый метод определения величины спиновой поляризации ферромагнитного металла, был обнаружен соавторами из Института металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАНУ (Киев) на контактах свинца с ферромагнитным сплавом Гейслера Co_2CrAl с различной, но контролируемой экспериментально спиновой поляризацией электронов проводимости.

Ключевые слова: квантово-механическое туннелирование, гетероструктуры, наноразмерные оксидные слои, дефектная структура, электрические характеристики, резистивные переключения, спиновая инжекция.

ABSTRACT

Boylo I.V. Current transfer in tunnel structures with inhomogeneous oxide layers. – Manuscript.

Thesis for a competition of the candidate scientific degree in physics and mathematics, specialty 01.04.07 – solid state physics. Donetsk Institute for Physics and Engineering named after O.O. Galkin, National Academy of Sciences of Ukraine, Donetsk, 2012.

The Ph.D. thesis is devoted to the study of the physical mechanisms of charge and spin currents in heterostructures with nano-scaled oxide interlayers caused by defects, spatial inhomogeneity of the oxide structure, and electronic ordering in the metallic electrodes. Correspondingly, the following tasks have been solved: (a) a general theoretical approach to calculations of transport characteristics of heterostructures with nano-scaled disordered insulating films based on elastic and inelastic tunneling effects in inhomogeneous potential barriers is developed; (b) current-voltage and shot-noise characteristics of tunnel structures with defect centers inside a barrier interlayer are calculated and a new method for the analysis of complex-oxide near-surface microstructure is proposed; (c) an effect of non-equilibrium processes on the current transfer from a ferromagnetic metal to a superconducting film across high-transmission oxide layers is studied and a novel approach to determination of a spin polarization of electrons in a magnetic electrode is proposed. Our theoretical results agree well with related experimental data.

Key words: quantum-mechanical tunneling, heterostructures, nano-scaled oxide layers, defect structure, electric characteristics, resistance switching, spin injection.

Бойло Ірина Вікторівна

**Струмоперенесення в тунельних структурах
з неоднорідними оксидними шарами**

(Автореферат)

Підписано до друку 15.11.2012. Формат 60x84/16.
Ум. друк. арк. 1.69. Накл. 100 прим. Зам. № 6/09.

Надруковано ТОВ «Цифрова типографія»
вул. Челюскінців, 291а, г. Донецьк, Україна
Св. № 193, сер. ДК, 20.09.2000 г.