

БЕЛОРУССКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

Объект авторского права

УДК 538.915, 538.935, 539.232

**ЛАРЬКИН
АНДРЕЙ ВИКТОРОВИЧ**

**АДМИТТАНС-СПЕКТРОСКОПИЯ
НАНОГРАНУЛИРОВАННЫХ КОМПОЗИЦИОННЫХ
ПЛЕНОК $\text{FeCoZr-Al}_2\text{O}_3$ И FeCoZr-PZT**

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

по специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния

Минск, 2024

Научная работа выполнена в Белорусском государственном университете.

Научный руководитель – **Федотов Александр Кириллович**,
доктор физико-математических наук, профессор,
главный научный сотрудник
научно-исследовательской лаборатории
физики перспективных материалов
научно исследовательского учреждения
«Институт ядерных проблем»
Белорусского государственного университета.

Официальные оппоненты: **Прищепа Сергей Леонидович**,
доктор физико-математических наук, профессор,
профессор кафедры защиты информации
учреждения образования «Белорусский
государственный университет
информатики и радиоэлектроники»;

Головчук Виктория Ивановна,
кандидат физико-математических наук,
ведущий научный сотрудник
общества с ограниченной ответственностью
«АркоЛаб».

Оппонирующая организация – Государственное научно-производственное
объединение «Научно-практический центр
Национальной академии наук Беларуси
по материаловедению»

Защита состоится 24 января 2025 г. в 16.00 на заседании совета
по защите диссертаций Д 02.01.16 при Белорусском государственном
университете по адресу: 220030, г. Минск, ул. Ленинградская 8
(корпус юридического факультета), ауд. 407.

Телефон ученого секретаря: 209-57-09; e-mail: alkholmetskii@gmail.com.

С диссертацией можно ознакомиться в Фундаментальной библиотеке
Белорусского государственного университета.

Автореферат разослан «23» декабря 2024 г.

И.о. ученого секретаря совета
по защите диссертаций Д 02.01.16,
доктор технических наук,
профессор



А.Л.Холмецкий

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в материаловедении большое внимание уделяется поиску новых методов быстрой и надежной диагностики свойств гетерогенных многофункциональных наноматериалов, физические характеристики и рабочие параметры которых напрямую зависят от морфологии (размеров, формы, характера распределения), химического состава и фазовой структуры компонент.

Среди множества таких материалов выделяются гранулярные плёночные нанокомпозиты (ПНК), чьи ключевые структурные, физические и химические особенности основаны на соотношении, распределении и взаимодействии компонент-наполнителей в тонкоплёночной диэлектрической матрице. Широкий спектр ПНК такого рода открывает перспективы их разнообразного применения во многих областях техники и технологий, начиная от устройств хранения энергии, элементов памяти, электротехнических компонент, и вплоть до использования в нанобиомедицине. Так, композиции углеродных нанотрубок с диэлектрическими пленками обладают возможностью применения для защиты от электромагнитных помех, а интерес к ПНК с графеном обусловлен потенциалом использования его гибридных структур в электронике. Отмеченная вариативность применения ПНК основана на важных наноразмерных (в том числе квантовых) эффектах, возникающих при взаимодействии как между различными наполнителями, так и при участии матрицы.

В ряду ПНК, уже применяющихся в инженерии, выделяются структуры металл-диэлектрик, чьи электропроводящие свойства позволяют использовать их в роли безвитковых индуктивных элементов. Данная область применения основана на эффекте отрицательной ёмкости¹ (ЭОЕ), заключающемся в отставании по фазе электрического тока от прикладываемого напряжения смещения. Как показано², существование ЭОЕ в таких ПНК зависит как от формы и распределения проводящих и диэлектрических частиц по размерам, так и от наличия оболочек из дополнительных фаз, возникающих в ходе синтеза и (или) последующей термообработки образцов.

Все сказанное обуславливает актуальность исследования ПНК такого рода с применением усовершенствованных эффективных методов диагностики, учитывающих морфологию образцов.

¹ Negative capacitance switching in size-modulated Fe₃O₄ nanoparticles with spontaneous non-stoichiometry: confronting its generalized origin in non-ferroelectric materials / S. Bhattacharjee [et al.] // *Nanoscale*. – 2020. – Vol. 3, iss 3. – P. 1528–1540.

² Negative capacitance in (FeCoZr)–(PZT) nanocomposite films / T. N. Koltunowicz [et al.] // *Journal of Physics D: Applied Physics*. – 2013. – Vol. 46. – P. 125304-1–125304-10.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Связь работы с крупными научными программами (проектами) и темами. Диссертационная работа выполнялась на кафедре энергофизики и завершена на кафедре физики твёрдого тела и нанотехнологий Белорусского государственного университета. Тема диссертационной работы соответствует перечню приоритетных направлений фундаментальных и прикладных научных исследований Республики Беларусь на 2006–2010 гг. (Постановление Совета Министров Республики Беларусь от 17.05.2005 № 512); на 2011–2015 гг. (Постановление Совета Министров Республики Беларусь от 09.06.2010 № 886); на 2016–2020 гг. (Постановление Совета Министров Республики Беларусь от 12.03.2015 № 190); перечню приоритетных направлений научной, научно-технической и инновационной деятельности на 2021 – 2025 гг. (Указ Президента Республики Беларусь от 07.05.2020 № 156).

Работа проводилась в рамках следующих программ и отдельных проектов:

1) «Разработка и исследование наногранулированных композиционных материалов металл-диэлектрик с импедансом индуктивного типа», задание № 2.04 ГПНИ «Композиционные материалы», 2009–2011 гг.; 2) «Спинтронные композиты металл-диэлектрик с контролируемыми магнитотранспортными свойствами», проект БРФФИ Ф10ГКНТ-001, 2010 – 2012 гг.; 3) «Нанокompозиты с ферромагнитными наночастицами типа «ядро-оболочка» в диэлектрических матрицах», проект БРФФИ-РФФИ Ф10Р-079, 2010–2012 гг.; 4) «Магниторезистивные и термоэлектрические свойства наногранулированных плёночных композитов», задание № 1.23 ГПНИ «Функциональные и машиностроительные материалы, наноматериалы», 2011–2013 гг.; 5) «Магнитоанизотропные спинтронные нанокompозиционные пленки для разработки устройств магнитной памяти и сенсорики», задание № 1.37 ГПНИ «Функциональные и композиционные материалы, наноматериалы», 2014 – 2015 гг.; 6) «Разработка новых технологических принципов создания планарных композиционных наноструктур на основе оксида кремния с реактивным импедансом индуктивного типа», проект БРФФИ Ф17УКРГ-003, 2017–2018 гг.

Цель, задачи, объект и предмет исследования. *Целью* работы являлось установление основных особенностей влияния морфологии (формы, размеров и характера распределения), химического (типа и концентрации атомов в содержащих металлы наночастицах со структурой ядро - оболочка) и фазового (вида и соотношения соединений железа, участвующих в формировании ядер наночастиц, и диэлектрических матриц) составов гранулярных плёночных нанокompозитов (ПНК) типов $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (в дальнейшем ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT соответственно)

на реализацию эффекта отрицательной ёмкости при переносе электронов в переменном электрическом поле.

Для достижения поставленной цели решались следующие задачи: 1) установление ключевых видов зависимостей адмиттанса $Y(f, T)$ ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT от частоты и температуры для разных областей концентраций x металлсодержащей фазы в диэлектрических матрицах; 2) установление корреляций между морфологическими особенностями (химический состав x ПНК, фазовая структура наногранул, соотношение объемов, занимаемых полупроводниковыми и диэлектрическими оксидами железа) и видом $Y(f, T)$ исследуемых ПНК; 3) построение эквивалентных схем замещения (ЭСЗ) ПНК и их использование для описания поведения зависимостей $Y(f, T)$ исследуемых образцов в различных диапазонах значений x , а также выявление вкладов компонент ЭСЗ (фаз в композите) в данные зависимости; 4) выявление и описание механизмов проводимости в ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT, исходя из видов температурно-частотных зависимостей полного адмиттанса ПНК в целом, а также активной и реактивной частей адмиттанса отдельных фаз (компонент ЭСЗ); 5) оценка морфологических, энергетических, временных и других параметров проводящих и непроводящих фаз в ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT, исходя из моделей электропереноса, вида ЭСЗ и зависимостей $Y(f, T)$; 6) выявление новых диагностических возможностей адмиттанс-спектроскопии при анализе электропереноса в ПНК металл-диэлектрик с учетом особенностей их морфологии, химического и фазового состава.

Объектом исследования являлись наногранулированные композиционные плёнки четырёх типов, осаждённые методом ионно-лучевого распыления композитных мишеней и подвергнутые ступенчатому изохронному отжигу на воздухе с шагом 25 К в течение 15 мин в диапазоне температур 398 – 873 К: 1) $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ (осаждение в атмосфере аргона, $P_{\text{Ar}} = 6,0 \cdot 10^{-2}$ Па); 2) $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ (осаждение в смеси $\text{Ar} + \text{O}_2$ при $P_{\text{O}_2} = 4,3 \cdot 10^{-3}$ Па); 3) $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (осаждение в смеси $\text{Ar} + \text{O}_2$ при $P_{\text{O}_2} = 2,0 \cdot 10^{-3}$ Па); 4) $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (осаждение в смеси $\text{Ar} + \text{O}_2$ при $P_{\text{O}_2} = 3,0 \cdot 10^{-3}$ Па).

Предметом исследования являлись механизмы переноса электронов в ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ под действием переменного электрического поля разной частоты и температуры в зависимости от их морфологии, химического и фазового состава.

Научная новизна. Научная новизна состоит в установлении ключевых особенностей влияния морфологии, химического и фазового состава ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ на перенос электронов под действием переменного электрического поля разной частоты и в зависимости от температуры.

Впервые показано, что для описания ПНК, представляющих собой трёхфазные (и более) системы из-за образования в процессе синтеза и (или) отжига на воздухе железосодержащих оксидных оболочек вокруг ядер металлических наночастиц, необходимо использовать две критических перколяционных характеристики – порог касания x_{c1} оболочек из оксидов Fe и порог формирования сплошного проводящего кластера x_{c2} из наночастиц $\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10}$. В результате, при определенной концентрации и фазовом составе оболочек из оксидов железа может наблюдаться кроссовер между отрицательным и положительным фазовым сдвигом θ электрического тока относительно напряжения смещения в окрестности x_{c1} . В частности, преобладание в оболочках оксидов железа именно полупроводникового типа (FeO , Fe_3O_4) наряду с наличием прослоек либо диэлектрической матрицы (при $x \leq x_{c1}$), либо диэлектрического оксида Fe_2O_3 вокруг оксидов полупроводниковых (при $x \approx x_{c1}$) приводит к наблюдению положительного угла фазового сдвига θ . Однако, если полупроводниковые оксиды железа касаются друг друга, а диэлектрические прослойки (Fe_2O_3 , Al_2O_3 или PZT) между ними отсутствуют, возникает адмиттанс ёмкостного типа с $\theta < 0$.

Впервые обнаружена особая роль полупроводниковых включений оксидов железа (FeO , Fe_3O_4) вокруг ядер металлических наночастиц в возникновении эффекта отрицательной ёмкости (ЭОЕ) в исследуемых ПНК. В частности, преобладание FeO и Fe_3O_4 в окрестности x_{c1} приводит к увеличению характерного времени локализации электронов τ на наночастицах, однако *лишь* при наличии между ними диэлектрических прослоек из матрицы или оксида железа диэлектрического типа (Fe_2O_3), что сопровождается величинами характерной энергии активации ΔE процесса прыжка электрона порядка $k_B T$. Только такая комбинация оксидов железа вокруг металлических ядер в окрестности x_{c1} способствует возникновению ЭОЕ ($\theta > 0$) в образцах.

Впервые установлено, что эквивалентные схемы замещения (ЭСЗ) нанокompозитов включают в себя два резонансных RCL-контура, присутствие которых сопровождается значениями $\theta > 0$ (наблюдением ЭОЕ), только при преобладании в окрестности x_{c1} в оболочках вокруг металлических наночастиц оксидов полупроводникового типа FeO и Fe_3O_4 наряду с наличием диэлектрических прослоек либо матрицы, либо оксида Fe_2O_3 между ними. Если же в ЭСЗ присутствует один резонансный RCL-контур, либо его нет, ЭОЕ отсутствует.

Положения, выносимые на защиту:

1. Комплекс температурно-частотных зависимостей адмиттанса $Y(T, f)$ в гранулярных плёночных нанокompозитах $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT соответственно),

синтезированных в аргоне (бинарные ПНК) или кислород-содержащей атмосфере и (или) отожженных в ней (небинарные ПНК), позволил установить взаимосвязь между видом $Y(T, f)$, морфологическими особенностями ПНК (состав x , фазовая структура наногранул и др.) и наличием в них эффекта отрицательной ёмкости (ЭОЕ): а) в окрестности порога касания x_{c1} наблюдается сосуществование положительного (при $T < 150$ К и $f > 100$ Гц) и отрицательного (при $T > 150$ К и $f < 1000$ Гц) фазового сдвига между прикладываемым напряжением и током; б) преобладание в оболочках вокруг металлических ядер наногранул $\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10}$ полупроводниковых оксидов железа (FeO , Fe_3O_4) приводит к наблюдению ЭОЕ при наличии диэлектрических прослоек Al_2O_3 (когда $x \leq x_{c1}$) или Fe_2O_3 (когда $x \approx x_{c1}$) между ними; в) преобладание в оболочках оксидов FeO и Fe_3O_4 в отсутствии диэлектрических прослоек (Al_2O_3 , PZT или Fe_2O_3) между ними приводит к адмиттансу ёмкостного типа.

2. Комплекс значений времени локализации τ и энергии активации ΔE процесса прыжка электронов, которые управляют зависимостями $Y(T, f)$ в ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT в окрестности порога касания x_{c1} в области $T < 150$ К: а) увеличение объема включений полупроводниковых оксидов FeO и Fe_3O_4 в оболочках вокруг гранул $\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10}$, обеспечивающее наличие ЭОЕ при наличии разделяющих их прослоек диэлектрического типа (Al_2O_3 , Fe_2O_3), приводит к росту τ до значений $\sim 10^{-4}$ с и сопровождается величинами $\Delta E \geq k_B T$; б) преобладание в оболочках полупроводниковых оксидов железа в отсутствии диэлектрических прослоек между ними приводит к снижению τ до $\sim 10^{-6}$ с и адмиттансу ёмкостного типа, так как прыжковый электроперенос в ПНК переходит в диффузионный.

3. Обоснование применимости метода адмиттанс-спектроскопии как эффективного дополнительного инструмента для индикации влияния морфологических особенностей ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT на механизмы электротранспорта на переменном токе: а) использование эквивалентных схем замещения (ЭСЗ) для ПНК с разным содержанием металлических ($\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10}$), диэлектрических (Al_2O_3 , PZT, Fe_2O_3) и полупроводниковых (FeO , Fe_3O_4) фаз позволяет разделить виды частотно-температурных зависимостей импеданса как для исходных компонент (металл, диэлектрик), так и для формирующихся оксидов железа в оболочках вокруг металлических ядер; б) преобладание в оболочках полупроводниковых оксидов FeO , Fe_3O_4 наряду с разделяющими их диэлектрическими прослойками Al_2O_3 , Fe_2O_3 , приводящее к наличию ЭОЕ в ПНК, сопровождается присутствием в ЭСЗ двух резонансных RCL-контуров; в) преобладание в оболочках оксидов железа полупроводникового типа при отсутствии диэлектрических прослоек между ними, когда ЭОЕ не наблюдается, приводит к ЭСЗ либо с одним резонансным

RCL-контуром, либо без него.

Личный вклад соискателя ученой степени. Для достижения поставленной цели автором был разработан подход, базирующийся на поиске корреляций между известными структурно-фазовыми характеристиками и выявленными особенностями электропереноса на переменном токе в ПНК металл-диэлектрик (-сегнетоэлектрик). Им была произведена самостоятельная постановка части задач, а также лично получены следующие представленные в диссертации результаты: осуществлен подбор и подготовка к измерениям образцов, выполнены измерения их электрофизических характеристик в широком диапазоне температур и частот переменного тока, произведены обработка, анализ полученных данных и все основные расчёты, сформулированы выводы и положения, выносимые на защиту.

Решение отдельных теоретических и экспериментальных задач, обсуждение результатов проводились в сотрудничестве с научным руководителем доктором физико-математических наук, профессором А. К. Федотовым (постановка задачи, обсуждение результатов), соавторами Ю. Е. Калининым, А. В. Ситниковым (синтез образцов), П. В. Жуковским, Т. Н. Колтуновичем (помощь в измерении электрофизических характеристик, обсуждение моделей электропроводности), Ю. А. Федотовой (предоставление результатов структурно-фазовых исследований образцов, обсуждение моделей электропроводности). Другие соавторы выполняли исследования, результаты которых не вошли в данную диссертацию.

Апробация диссертации и информация об использовании её результатов. Результаты представленных в работе исследований докладывались на научных семинарах кафедр энергофизики и физики твёрдого тела и нанотехнологий БГУ, а также на следующих конференциях: II Всероссийской конференции по наноматериалам (Новосибирск, 13–16 марта 2007 г.); The International Conference on Physics, Chemistry and Application of Nanostructures (Minsk, 22–25 May 2007, 26–29 May 2009); Международной научной конференции «Актуальные проблемы физики твердого тела», (Минск, 23–26 октября 2007 г.); 5th International Conference New Electrical and Electronical Technologies and Their Industrial Implementation (Zakopane, Poland, 12–15 June 2007); VII, VIII International Conference on Ion Implantation and Other Applications of Ions and Electrons (Kazimierz Dolny, Poland, 16–19 June 2008, 14–17 June 2010); International Conference Radiation Interaction with Material and Its Use in Technologies (Kaunas, Lithuania, 24–27 September 2008); 9th IEEE Conference on Nanotechnology (Genoa, Italy, 26–30 July 2009); Fourth Seeheim Conference on Magnetism (Frankfurt, Germany, 28 March – 1 April 2010); Conference & Exhibition «Science and Applications of Thin Films» (Cesme, Izmir,

Turkey, 15–19 September 2014); IX, X International Scientific Conference «Actual Problems of Solid State Physics» (Minsk, 22–26 November 2021, 22–26 May 2023).

По результатам диссертации получено 3 патента на изобретение.

Опубликованность результатов диссертации. Основные результаты диссертации опубликованы в 46 научных работах, из них: 24 статьи в научных рецензируемых изданиях, соответствующих п. 19 Положения о присуждении ученых степеней и присвоении ученых званий (общим объемом 11,2 авторских листа), 8 статей в сборниках материалов научных конференций, 11 тезисов докладов, 3 патента.

Структура и объем диссертации. Диссертационная работа состоит из перечня сокращений и обозначений, введения, общей характеристики работы, пяти глав основной части, заключения, списка использованных источников, приложения. Полный объем диссертации составляет 148 страниц, в том числе 74 рисунка занимают 42 страницы, 3 таблицы на 3 страницах, 1 приложение на 2 страницах. Список использованных источников содержит 174 наименования, включая собственные публикации соискателя ученой степени (на 7 страницах).

ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

В **первой главе** представлен аналитический обзор литературы, в котором проведён анализ экспериментальных и теоретических результатов исследования структуры, а также электротранспортных свойств нанокompозитов металл-диэлектрик, демонстрирующий непосредственную связь между данными свойствами и особенностями морфологии материалов такого рода. Показано, что бинарные модели, описывающие электротранспорт в них, зачастую требуют доработки с целью описания эффектов, наблюдаемых в современных нанокompозиционных материалах, т.к. они не учитывают их морфологическую сложность (наличие трёх и более фаз) и, как следствие, не позволяют установить достоверные корреляции между характеристиками электропереноса и морфологическими особенностями образцов. В связи с этим в главе 1 также проведено рассмотрение и обосновано применение моделей электротранспорта на переменном токе, способных учесть сложный структурно-фазовый состав нанокompозитов и, следовательно, дающих возможность оценить их морфологические особенности без применения специальных структурных методов.

Во **второй главе** описаны методика синтеза и отжига образцов, методы их экспериментального исследования. Синтез ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ производился методом ионно-лучевого распыления составных мишеней, после чего плёнки были подвергнуты ступенчатому изохронному отжигу на воздухе с шагом 25 К в течение 15 мин в диапазоне

температур 398 – 873 К. Осаждение ПНК- Al_2O_3 осуществлялось в атмосфере Ar чистотой 99,992 % (при $P_{\text{Ar}} = 6,0 \cdot 10^{-2}$ Па) или в смеси Ar+ O_2 ($P_{\text{O}_2} = 4,3 \cdot 10^{-3}$ Па); ПНК-PZT – только в смеси Ar+ O_2 (при $P_{\text{O}_2} = 2,0 \cdot 10^{-3}$ Па и $P_{\text{O}_2} = 3,0 \cdot 10^{-3}$ Па).

Для анализа структуры ПНК, а также определения их толщины и химического состава использовались сканирующий растровый микроскоп с приставкой для энергодисперсионного анализа и просвечивающий электронный микроскоп высокого разрешения. Анализ фазового состава образцов до и после отжига проводился методами мёссбауэровской спектроскопии, электронной и рентгеновской дифракции, а также края рентгеновского поглощения³.

Измерение электропроводящих характеристик осуществлялось с помощью лабораторной установки для измерения температурно-частотных зависимостей адмиттанса $Y(f, T)$ в диапазоне температур 77 – 350 К и частот переменного тока 100 Гц – 5 МГц с электрометрическим усилителем сигнала для проведения измерений высокоомных ПНК. Анализ результатов измерений проводился методом импеданс-(адмиттанс-)спектроскопии на основе изучения зависимостей $Y(f, T)$ образцов, а также частотных зависимостей углов сдвига фаз $\theta(f)$ между прикладываемым напряжением и электрическим током в них.

В третьей главе представлены результаты изучения температурно-частотных зависимостей удельных значений действительной части адмиттанса $\sigma(f, T)$ ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT. На его основе показано, что для описания адмиттанса $\sigma(f, T)$ в ПНК, содержащих более двух фаз вследствие образования оболочек из оксидов Fe вокруг ядер металлических наночастиц $\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10}$ (то есть не являющихся бинарными системами, к которым относятся только осаждённые в Ar ПНК- Al_2O_3), необходимо введение двух критических характеристик: 1) порога касания x_{c1} оболочек соседствующих наночастиц ($x_{c1} \approx 0,43$ в ПНК- Al_2O_3 , осаждённых в смеси Ar+ O_2 , и $\approx 0,56$ в ПНК-PZT, синтезированных при $P_{\text{O}_2} = 3,0$ мПа); 2) порога формирования сплошного электропроводящего кластера x_{c2} при касании металлических ядер вследствие несплошности оксидных оболочек ($x_{c2} \approx 0,52$ в ПНК- Al_2O_3 , осаждённых в смеси Ar+ O_2 , и $\approx 0,77$ в ПНК-PZT, синтезированных при $P_{\text{O}_2} = 2,0$ мПа).

Указанные корреляции между типами адмиттанса и видом $\sigma(f, T)$ иллюстрирует рисунок 1, где зависимости $\sigma(f, T)$ до порога касания ($x < x_{c1}$) соответствуют диэлектрическому типу адмиттанса (рисунок 1а). Однако после порога формирования сплошного проводящего кластера ($x > x_{c2}$) их характер в данной области высоких концентраций x все равно является преимущественно неметаллическим (рисунок 1б) даже на фоне формирования проводящей

³ Федотова, Ю. А. Локальный атомный порядок, перенос электронов и магнитное состояние стабилизированных нанокмполитов ферромагнитный сплав – диэлектрик : дис. ... д-ра физ.-мат. наук : 01.04.07/ Ю. А. Федотова. – Минск, 2012. – 269 л.

перколяционной сети, тем не менее включающей и полупроводниковые оболочки из оксидов Fe. Это является существенным отличием от поведения $\sigma(f, T)$ в бинарных системах (ПНК- Al_2O_3 , осажденных в атмосфере Ar) на металлической стороне перехода металл-диэлектрик ($x > x_c$), где наблюдается исключительно металлический тип адмиттанса.

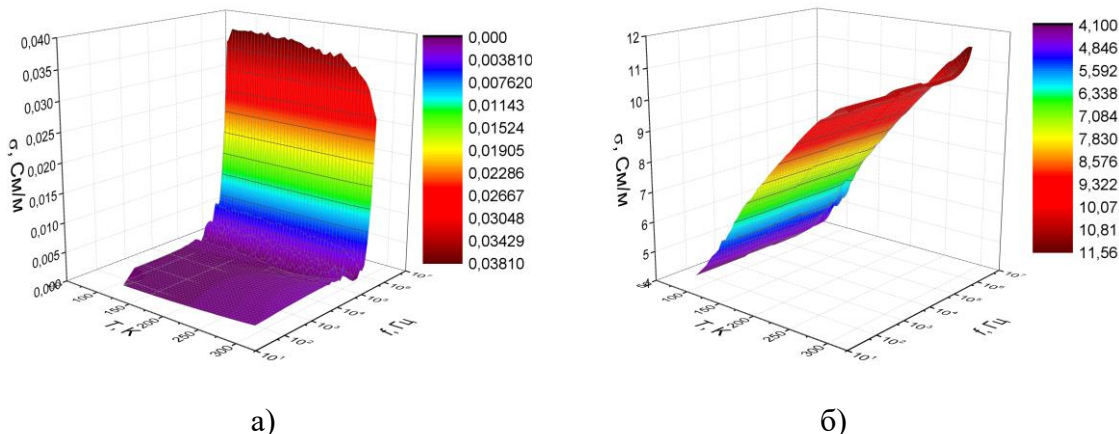


Рисунок 1 – Температурно-частотные зависимости удельных значений действительной части адмиттанса осаждённых в смеси Ar+O₂ ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ при $x = 0,31$ (а) и $0,62$ (б)

Кроме того, в главе 3 показано, что в окрестности порога касания x_{c1} соотношение ёмкостного ($\theta < 0$) и псевдоиндуктивного ($\theta > 0$) вкладов в адмиттансе неметаллического типа определяется относительным количеством полупроводниковых (FeO , Fe_3O_4) и диэлектрического (Fe_2O_3) оксидов в оболочках вокруг металлических ядер (рисунок 2а).

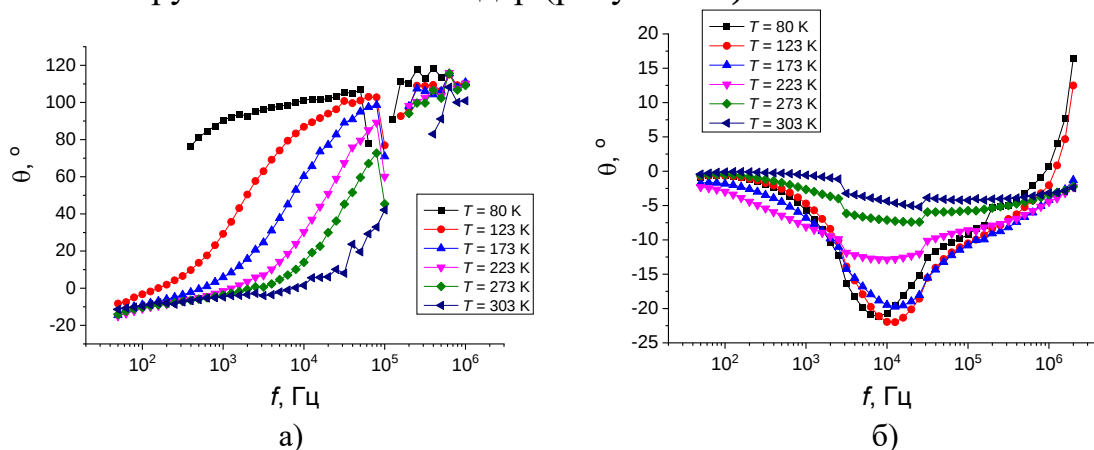


Рисунок 2 – Частотные зависимости угла сдвига фаз в осаждённых в смеси Ar+O₂ ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ при $x = 0,31$ (а) и $0,50$ (б) после отжига при $T_{\text{отж}} = 623 \text{ K}$

При этом, преобладание в оболочках оксидов полупроводникового типа FeO и Fe_3O_4 приводит к наблюдению ЭОЕ только при наличии между ними прослойка либо диэлектрической матрицы (при $x \leq x_{c1}$ в ПНК- Al_2O_3 , осаждённых в смеси Ar+O₂), либо диэлектрического оксида Fe_2O_3 (при $x \approx x_{c1}$ в ПНК-PZT,

синтез при $P_{O_2} = 3,0$ мПа). Однако, если полупроводниковые оксиды Fe касаются друг друга, а диэлектрические прослойки (Fe_2O_3 , Al_2O_3 или PZT) между ними отсутствуют, всегда наблюдается адмиттанс ёмкостного типа.

В случае доминирования адмиттанса металлического типа (при $x > x_c$ или $x > x_{c2}$) характер $\theta(f)$ в образцах преимущественно ёмкостной (рисунок 2б).

В четвёртой главе представлены результаты изучения характеристик электропереноса в случае ПНК с адмиттансом неметаллического типа. Показано, что в окрестности x_{c1} перенос является преимущественно прыжковым с постоянной длиной прыжка, в связи с чем он описывается усовершенствованной моделью прыжковой проводимости⁴, учитывающей частотную зависимость показателя степени в соотношении Мотта:

$$\sigma(f) = \sigma_0(T) f^{\alpha(f)}. \quad (1)$$

Согласно модели, время локализации электронов τ на потенциальных ямах определяется зависимостями $\sigma(f)$ и $\alpha(f)$ соответствующего вида (рисунок 3): максимум $\alpha(f)$ наблюдается на частоте f_{max} , выше которой $\theta > 0$ из-за отставания электрического тока по фазе от приложенного напряжения. Тогда τ на основе распределения Ландау может быть определено как $\tau = \frac{1}{2\pi f_{max}}$.

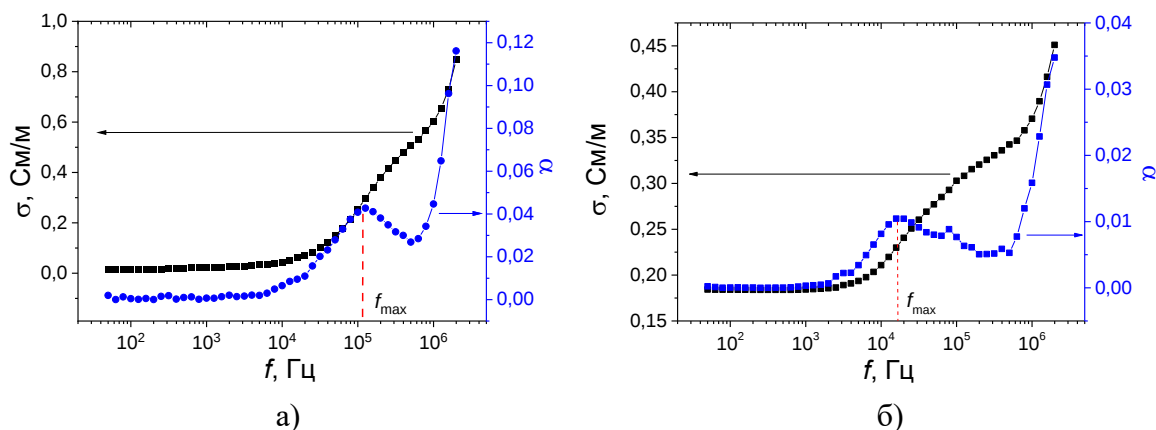


Рисунок 3 – Частотные зависимости удельных значений действительной части адмиттанса и показателя степени в соотношении Мотта (1) для осаждённого в Ar ПНК $(Fe_{0,45}Co_{0,45}Zr_{0,10})_{0,31}(Al_2O_3)_{0,69}$ при $T = 303$ К (а) и при $T = 173$ К после отжига при $T_{отж} = 623$ К (б)

Также в главе 4 показано, что при наблюдении ЭОЕ соответствующее ему преобладание вкладов полупроводниковых оксидов FeO и Fe_3O_4 в адмиттанс

⁴ Application of elements of quantum mechanics in analyzing AC conductivity and determining the dimensions of water nanodrops in the composite of cellulose and mineral oil / P. Zukowski [et al.] // Cellulose. – 2019. – Vol. 26. – P. 2969–2985.

инициирует задержку электрона на потенциальных ямах с возрастанием τ (рисунок 4) при наличии диэлектрических прослоек матрицы или оксида Fe_2O_3 между ними. В этом случае именно прыжковый перенос внутри диэлектрических прослоек сменяет диффузионный в оболочках из полупроводниковых оксидов. Так, в ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,38}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0,62}$, осаждённом в смеси $\text{Ar}+\text{O}_2$, где наблюдаются $\theta > 0$, $\tau \sim 10^{-4}$ с. При этом преобладание в окрестности x_{c1} в оболочках оксидов Fe полупроводникового типа в отсутствии диэлектрических прослоек между ними приводит к снижению τ до $\sim 10^{-5}$ с (например, при $x \geq x_{c1}$ в неотожжённых и отождённых при температурах вплоть до $T_{\text{отж}} = 623$ К ПНК- Al_2O_3 , осаждённых в смеси $\text{Ar}+\text{O}_2$) и $\theta < 0$, так как перенос заряда в ПНК остаётся диффузионным.

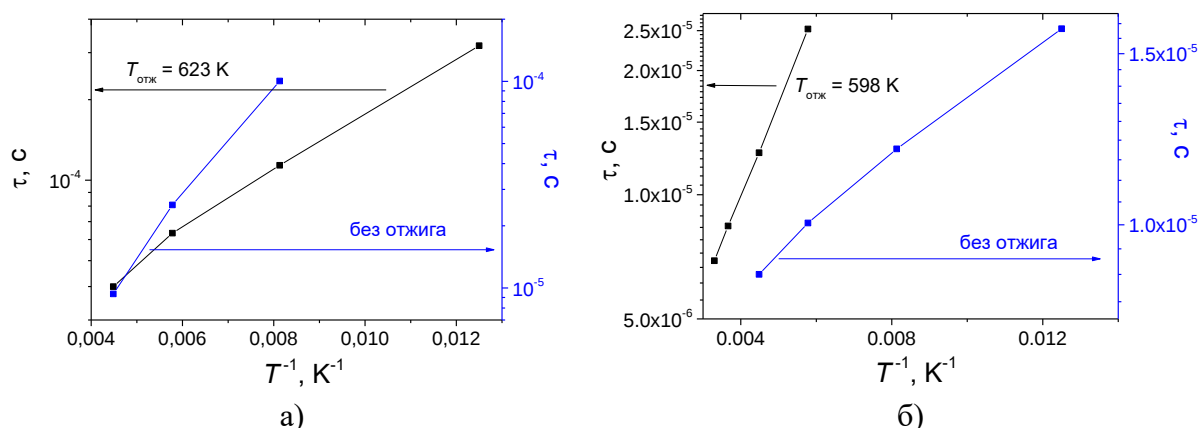


Рисунок 4 – Температурные зависимости времени локализации электрона для неотожжённых и отождённых ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,38}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0,62}$ (а) и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,52}(\text{PZT})_{0,48}$, осаждённом при $P_{\text{O}_2} = 2,0$ мПа, (б) в случае синтеза образцов в смеси $\text{Ar}+\text{O}_2$

Также в области составов и температур, где увеличение объёма включений полупроводниковых оксидов FeO и Fe_3O_4 в оболочках при наличии прослоек либо диэлектрической матрицы, либо оксида Fe_2O_3 диэлектрического типа между ними приводит к реализации ЭОЕ, на основе температурных зависимостей $\sigma(T)$ с помощью соотношения Аррениуса оценена энергия термической активации ΔE процесса прыжка электрона, ассистированного фононами. Показано, что характер наблюдающегося при этом прыжкового механизма проводимости с постоянной длиной прыжка является активационным с величинами ΔE порядка $k_B T$ (так, $\Delta E = 20$ мэВ в ПНК- Al_2O_3 , осаждённом в смеси $\text{Ar}+\text{O}_2$, при $x = 0,50$ на частоте $f = 1,0$ кГц в случае отжига при $T_{\text{отж}} = 873$ К, когда $\theta \approx 90^\circ$).

В пятой главе на основе анализа амплитудно-частотных характеристик импеданса $Z(f)$ ПНК проведено построение эквивалентных схем замещения (ЭСЗ) образцов, позволившее установить взаимосвязь типов наблюдавшихся ЭСЗ с особенностями их морфологии. Показано, что в случае, когда в ПНК

наблюдается ЭОЕ, их зависимости $Z(f)$ характеризуются двумя максимумами (рисунок 5а), что соответствует ЭСЗ с двумя резонансными RCL-контурами. Последние можно сопоставить соответственно вкладам полупроводниковых (FeO , Fe_3O_4) и диэлектрических (Al_2O_3 , Fe_2O_3) оксидных фаз. В случае же, когда в ЭСЗ присутствует только один резонансный RCL-контур, соответствующий зависимости $Z(f)$ с одним максимумом (рисунок 5б), или их нет вообще, адмиттанс имеет ёмкостный характер.

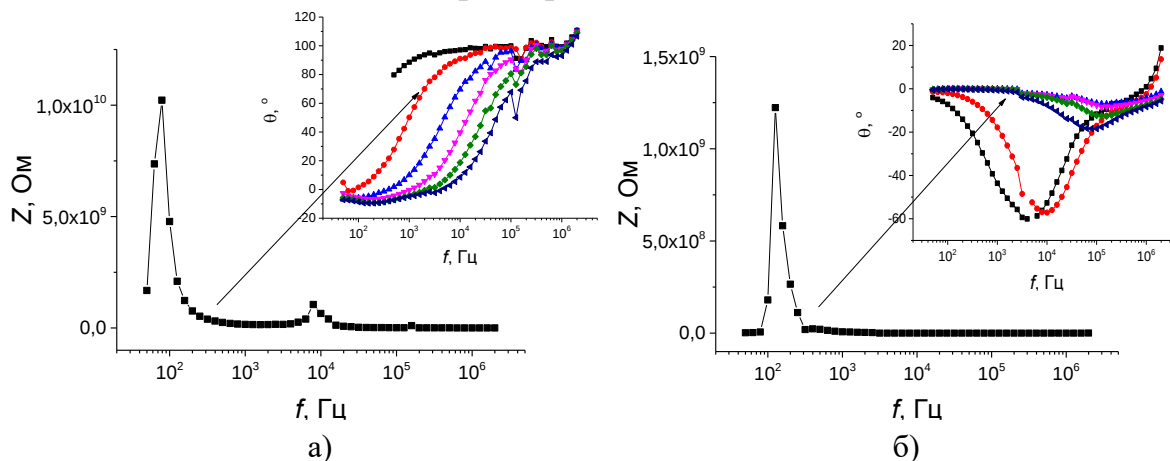


Рисунок 5 – Амплитудно-частотные зависимости импеданса осаждённых в смеси $\text{Ar}+\text{O}_2$ ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ в случае $x = 0,31$, $T = 123$ К (а) и $x = 0,50$, $T = 173$ К (б), где на вставках представлены частотные зависимости угла сдвига фаз в них

Анализ вкладов элементов ЭСЗ в зависимости $Z(f)$ ПНК показал, что при наличии в ЭСЗ двух резонансных RCL-контуров, реактивные составляющие R_{C1} и R_{L1} (рассчитанные на резонансных частотах, соответствующих пикам их зависимостей $Z(f)$) первого RCL-контура больше активной составляющей R_1 (так, для ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,31}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0,69}$, осаждённого в смеси $\text{Ar}+\text{O}_2$, $R_{C1} = 97,4 \text{ ГОм} > R_1 = 8,9 \text{ ГОм}$ при $T = 173 \text{ К}$). Это позволяет сопоставить данный контур со вкладом в адмиттанс диэлектрических матриц и (или) оксида Fe_2O_3 . Во втором контуре R_{C2} и R_{L2} всегда меньше R_2 (например, для ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,31}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0,69}$, осаждённого в смеси аргон-кислород, $R_{C2} = 7,2 \text{ МОм} < R_2 = 1,1 \text{ ГОм}$ при $T = 173 \text{ К}$). Это позволяет приписать данный контур влиянию полупроводниковых оксидов FeO и Fe_3O_4 на адмиттанс. При наличии в ЭСЗ одного резонансного RCL-контура, его реактивные сопротивления R_{C1} и R_{L1} больше активного R_1 (например, для осаждённого в атмосфере Ar ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,31}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0,69}$ $R_{C1} = 11,8 \text{ ГОм} > R_1 = 0,89 \text{ ГОм}$ при $T = 173 \text{ К}$), что позволяет поставить в соответствие этот контур вкладу в адмиттанс диэлектрических матриц и (или) оксида Fe_2O_3 .

Также, исходя из температурных зависимостей выделенных элементов ЭСЗ ПНК в случае наблюдения в них ЭОЕ, определены величины их энергий термической активации ΔE . На основе последних (если ΔE приписать энергии

электрического диполя, образующегося после прыжка электрона) проведена оценка длин r прыжков в разных фазах ПНК, соответствующих различным элементам ЭСЗ. Показано, что прыжки электронов между металлическими ядрами в окрестности x_{c1} осуществляются либо через ближайшие окружающие их оболочки из полупроводниковых оксидов Fe путём туннелирования через прослойки матрицы (в ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,31}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0,69}$, где $r \geq 4,5$ нм), либо только через ближайшие окружающие их тонкие оболочки из оксидов Fe (в ПНК $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_{0,52}(\text{PZT})_{0,48}$, осаждённом при $P_{\text{O}_2} = 3,0$ мПа, где $r \geq 1,0$ нм).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные научные результаты диссертации

1. Анализ температурно-частотных зависимостей адмиттанса $Y(T, f)$ в гранулярных плёночных нанокompозитах $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT соответственно), показал, что наличие кислорода в среде осаждения или отжига по сравнению с синтезированными в аргоне бинарными ПНК- Al_2O_3 , характеризующимися только одним критическим перколяционным значением концентрации x металлической фазы – порогом перколяции $x_c = 0,42$, приводит к увеличению объёма оксидов Fe в оболочках вокруг ядер наночастиц $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})$ во всей изученной области x и соответствующей небинарности ПНК, что проявляется в: а) сдвиге порога перколяции x_c в область более высоких x (с 0,42 до 0,50 после отжига при $T_{\text{отж}} = 623$ К осаждённых в Ar ПНК- Al_2O_3); б) возникновении порогов касания x_{c1} оболочек соседствующих наночастиц и формирования сплошного проводящего кластера x_{c2} из металлических ядер наночастиц ($x_{c1} = 0,43$, $x_{c2} = 0,52$ в осаждённых в смеси Ar+ O_2 ПНК- Al_2O_3); в) преимущественном сдвиге x_{c1} в область более низких значений (с 0,43 до 0,38 после отжига при $T_{\text{отж}} = 623$ К осаждённых в смеси Ar+ O_2 ПНК- Al_2O_3); г) формальном исчезновении x_{c1} в ПНК- Al_2O_3 (после отжига при $T_{\text{отж}} = 873$ К) и д) x_{c2} в ПНК- Al_2O_3 (после отжига при $T_{\text{отж}} = 623$ К) и ПНК-PZT (при повышении парциального давления кислорода P_{O_2} в камере синтеза с 2,0 до 3,0 мПа или в результате отжига ПНК, осаждённых при $P_{\text{O}_2} = 2,0$ мПа) [4–А, 6–А, 8–А – 10–А, 13–А, 14–А, 16–А, 18–А, 20–А, 24–А].

2. Анализ частотных зависимостей углов сдвига фаз $\theta(f)$ между прикладываемым напряжением и током в ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT показал, что соотношение ёмкостного ($\theta < 0$) и псевдоиндуктивного ($\theta > 0$) вкладов в адмиттанс определяется концентрацией металлической фазы $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})$, а также относительным количеством полупроводниковых (FeO, Fe_3O_4) и диэлектрических (Al_2O_3 , PZT, Fe_2O_3) оксидов вокруг ядер наночастиц $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})$ или прослойках между ними: а) эффект отрицательной ёмкости (ЭОЕ) с $\theta > 0$ наблюдается преимущественно при $T < 150$ К и $f > 100$ Гц в

окрестности порога касания x_{c1} : при $x \approx x_{c1}$ в осаждённых при $P_{O_2} = 3,0$ мПа ПНК-PZT и при $x \leq x_{c1}$ в осаждённых в смеси Ag+O₂ ПНК-Al₂O₃; б) максимальный ЭОЕ с $\theta \approx 90^\circ$ присутствует в осаждённых в смеси Ag+O₂ ПНК-Al₂O₃ при $x = 0,31$ после отжига при $T_{отж} = 873$ К во всем изучаемом диапазоне температур и частот, а при $T < 150$ К и $f > 100$ Гц – и во всём изучаемом диапазоне $x = 0,30 - 0,65$; в) преобладание в оболочках вокруг металлических ядер полупроводниковых оксидов FeO и Fe₃O₄ приводит к наблюдению ЭОЕ в ПНК *при наличии* разделяющих их диэлектрических прослоек матрицы (когда $x \leq x_{c1}$) или оксидов Fe₂O₃ (когда $x \approx x_{c1}$); г) преобладание в оболочках полупроводниковых оксидов FeO и Fe₃O₄ *при отсутствии* диэлектрических прослоек (Al₂O₃, PZT или Fe₂O₃) между ними приводит к адмиттансу ёмкостного типа с $\theta < 0$ [12–А, 15–А, 17–А–24–А].

3. Анализ значений времени локализации τ электронов на металлических наночастицах в ПНК-Al₂O₃ и ПНК-PZT показал, что в окрестности порога касания x_{c1} в области температур $T < 150$ К увеличение объёма включений полупроводниковых оксидов FeO и Fe₃O₄ в оболочках металлических ядер приводит к: а) реализации в ПНК прыжкового механизма проводимости и возникновению ЭОЕ вследствие роста τ до величин $\sim 10^{-4}$ с (при $T = 123$ К $\tau = 100$ мкс и 114 мкс в осаждённом в смеси Ag+O₂ ПНК-Al₂O₃ при $x = 0,38$ до и после отжига при $T_{отж} = 623$ К соответственно и $\tau = 12$ мкс в осаждённом при $P_{O_2} = 2,0$ мПа ПНК-PZT при $x = 0,52$, в котором ЭОЕ отсутствует) *при обязательном наличии* разделяющих их диэлектрических прослоек матрицы или оксида Fe₂O₃; б) адмиттансу ёмкостного типа, возникающему вследствие снижения τ до величин $\sim 10^{-6}$ с (при $x \geq x_{c1}$ в осаждённых в смеси Ag+O₂ ПНК-Al₂O₃ $\tau \sim 10^{-5}$ с как до, так и после отжига при $T_{отж} = 623$ К) *в отсутствие* диэлектрических прослоек между ними, когда прыжковый электроперенос в ПНК переходит в диффузионный. При этом соответствующее моттовскому механизму проводимости на переменном токе значение показателя степени $\alpha = 0,8$ в соотношении $\sigma(f) \sim f^\alpha$, наблюдается только в осаждённых в атмосфере Ag бинарных ПНК-Al₂O₃ до порога перколяции; во всех остальных изучаемых ПНК, морфологически являющихся небинарными, в случае реализации в них прыжкового механизма проводимости или суперпозиции механизмов с участием прыжкового в окрестности x_{c1} наблюдается зависящий от частоты переменного тока показатель $\alpha(f)$, лежащий в диапазоне 0 – 2 ($\alpha = 0,11$ в осаждённом в смеси Ag+O₂ ПНК-Al₂O₃ при $x = 0,38$ и $T = 303$ К) [2–А, 3–А, 5–А, 6–А, 18–А, 20–А–22–А, 24–А].

4. Анализ значений энергии активации процесса прыжка ΔE электронов в ПНК-Al₂O₃ и ПНК-PZT показал, что в окрестности порога касания x_{c1} в области температур $T < 150$ К при преобладании в оболочках вокруг металлических ядер полупроводниковых оксидов FeO и Fe₃O₄, разделённых диэлектрическими

прослойками Al_2O_3 или Fe_2O_3 , ЭОЕ обусловлен ассистированными фононами прыжками электронов проводимости между металлическими наночастицами с величинами $\Delta E \geq k_B T$ ($\Delta E = 20$ мэВ в ПНК- Al_2O_3 при $x = 0,50$ на частоте $f = 1,0$ кГц в случае отжига при $T_{\text{отж}} = 873$ К и 13 мэВ в осаждённом при $P_{\text{O}_2} = 3,0$ мПа ПНК-PZT при $x = 0,52$ на частоте $f = 10$ кГц в случае синтеза ПНК в смеси $\text{Ag} + \text{O}_2$, в которых $\theta \approx 90^\circ$) [6–А, 7–А, 11–А, 18–А, 20–А – 22–А, 24–А].

5. Построение на основе анализа амплитудно-частотных характеристик импеданса $Z(f)$ ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT эквивалентных схем замещения (ЭСЗ) показало, что: а) преобладание вкладов диэлектрических прослоек (Al_2O_3 , PZT, Fe_2O_3) в электротранспорт образцов приводит к характеризующимся одно- или двухступенчатыми кривыми $Z(f)$ гиперболического типа зависимостям $Z(f)$, что означает наличие в ЭСЗ одного или двух параллельных RC-контуров соответственно, либо зависимостями $Z(f)$ с одним максимумом и одним резонансным RCL-контуром в ЭСЗ; при этом двум параллельным RC-контурам в ЭСЗ (в ПНК-PZT за порогом касания x_{c1}) можно поставить в соответствие отдельные вклады диэлектрических матрицы PZT и оксида Fe_2O_3 в оболочках вокруг ядер металлических наночастиц; б) преобладание в указанных оболочках полупроводниковых оксидов FeO и Fe_3O_4 *при наличии* разделяющих их диэлектрических прослоек матрицы или оксида Fe_2O_3 (когда в ПНК наблюдается ЭОЕ) приводит к зависимостям $Z(f)$ с двумя максимумами (при $x \leq x_{c1}$ в ПНК- Al_2O_3 , осаждённых в смеси $\text{Ag} + \text{O}_2$, или при $x \approx x_{c1}$ в ПНК-PZT, осаждённых при $P_{\text{O}_2} = 3,0$ мПа), что соответствует ЭСЗ, включающей в себя два резонансных RCL-контуров, которые можно сопоставить отдельно вкладам полупроводниковых (FeO, Fe_3O_4) и диэлектрических (Al_2O_3 , Fe_2O_3) оксидных фаз; в) *в отсутствие* диэлектрических прослоек между преобладающими в оболочках вокруг металлических ядер оксидами FeO и Fe_3O_4 (когда адмиттанс ПНК носит ёмкостный характер) зависимости $Z(f)$ ПНК характеризуются одним максимумом (при $x \geq x_{c1}$ в осаждённых в смеси $\text{Ag} + \text{O}_2$ ПНК- Al_2O_3), что соответствует ЭСЗ, включающей в себя один резонансный RCL-контур, который можно приписать преимущественному вкладу полупроводниковых оксидов FeO и Fe_3O_4 [1–А, 16–А–19–А, 22–А, 23–А].

6. Анализ вкладов элементов ЭСЗ в зависимости $Z(f)$ импеданса ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT показал, что при наличии в ЭСЗ а) двух резонансных RCL-контуров, сопровождающем возникновение ЭОЁ, реактивные составляющие R_{C1} и R_{L1} первого RCL-контуров больше активной R_1 (в осаждённом в смеси $\text{Ag} + \text{O}_2$ ПНК- Al_2O_3 при $x = 0,31$ $R_{C1} = 97,4$ ГОм $> R_1 = 8,9$ ГОм при $T = 173$ К, где R_{C1} определено на резонансной частоте $f = 500$ Гц), что позволяет сопоставить этот контур со вкладом в адмиттанс диэлектрических матриц и оксида Fe_2O_3 , а составляющие R_{C2} и R_{L2} второго RCL-контуров меньше R_2 (в том же ПНК $R_{C2} = 7,2$ МОм $< R_2 = 1,1$ ГОм при $T = 173$ К, где R_{C2} определено на

резонансной частоте $f = 251,2$ кГц), что позволяет приписать этот контур влиянию на адмиттанс полупроводниковых оксидов FeO и Fe₃O₄; б) одного резонансного RCL-контра, его реактивные сопротивления R_{C1} и R_{L1} больше активного R_1 (в осаждённом в атмосфере аргона ПНК-Al₂O₃ при $x = 0,31$ $R_{C1} = 11,8$ ГОм $> R_1 = 0,89$ ГОм при $T = 123$ К, где R_{C1} определено на резонансной частоте $f = 158$ Гц), что позволяет поставить в соответствие этот контур вкладу в адмиттанс диэлектрических матриц и оксида Fe₂O₃; в) резонансных RCL-контуров в принципе, стимулирующий дополнительное образование оксидных фаз в оболочках вокруг металлических ядер отжиг ПНК приводит к соответствующему росту активных R_i и перераспределению величин реактивных R_{Ci} и R_{Li} составляющих ЭСЗ, при этом в случае наблюдения в ПНК ЭОЕ наибольшее возрастание заметно у активной составляющей R_2 второго RCL-контра (в осаждённом в смеси Ag+O₂ ПНК-Al₂O₃ при $x = 0,31$ после отжига при $T_{отж} = 873$ К изменение R_2 составляет $0,19$ ГОм $\rightarrow 0,89$ ГОм при $T = 223$ К, где R_{C1} определено на резонансной частоте $f = 15,85$ кГц) [16–А, 23–А].

7. Анализ средних величин длин r прыжков, описывающих электроперенос, соответствующий различным элементам ЭСЗ (фазам ПНК), и оцененных с использованием температурных зависимостей активных и реактивных составляющих ЭСЗ ПНК-Al₂O₃ и ПНК-PZT с повышенным содержанием кислорода при наличии в них двух RCL-контуров, сопровождающих возникновение ЭОЕ, в полном соответствии с морфологическими представлениями показал, что прыжки электронов между металлическими ядрами в таком случае осуществляются или а) через ближайшие окружающие их оболочки из оксидов железа полупроводникового типа путём туннелирования сквозь прослойки матрицы (в ПНК-Al₂O₃, где $r \geq 4,5$ нм при $x = 0,31$), или б) только через ближайшие окружающие их тонкие оболочки из оксидов железа (в ПНК-PZT, где $r \geq 1,0$ нм при $x = 0,52$ в случае синтеза при $P_{O_2} = 3,0$ мПа), что обусловлено более высокими значениями диэлектрической проницаемости матрицы PZT [7–А, 11–А, 21–А, 23–А].

Рекомендации по практическому использованию результатов

Результаты исследований могут быть использованы при проектировании и разработке устройств наноэлектроники (плёночных устройств с импедансом индуктивного типа). В частности, перспективы применения исследуемых материалов в данной области описаны в трёх патентах [44–А – 46–А].

Результаты работы также использованы в учебном процессе физических факультетов классических университетов, что подтверждается актами о внедрении №24/497 и №24/498 от 22 декабря 2023 г.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ СОИСКАТЕЛЯ УЧЕНОЙ СТЕПЕНИ

*Статьи в научных рецензируемых изданиях в соответствии с п. 19
Положения о присуждении ученых степеней и присвоении ученых званий*

1–А. Impedance spectroscopy study of amorphous composites $x(\text{Fe}_{0.45}\text{Co}_{0.45}\text{Zr}_{0.10})+(1-x)(\text{Al}_2\text{O}_3)$ / B. Andriyevsky, A. Patryn, Z. Czapla, S. Dacko, J.A. Fedotova, A.V. Larkin, V.V. Fedotova // Przegląd Elektrotechniczny. – 2008. – Vol. 84, № 3. – P. 117–119.

2–А. Wpływ wygrzewania na właściwości elektryczne nanokompozytów $(\text{CoFeZr})_x+(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, P. Wegierek, J. Fedotova, A. Fedotov, A. Larkin // Przegląd Elektrotechniczny. – 2008. – Vol. 84, № 3. – P. 247–249.

3–А. Model przewodności skokowej i jego weryfikacja dla nanostruktur wytwarzanych technikami jonowymi / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, P. Wegierek, M. Kolasik, A. Larkin, J. Fedotova, A. Fedotov, F. Komarov, L. Vlasukova // Przegląd Elektrotechniczny. – 2008. – Vol. 84, № 3. – P. 250–252.

4–А. Electrical properties of nanostructures $(\text{CoFeZr})_x+(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ with use of alternating current / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, J. Fedotova, A. Larkin // Vacuum. – 2009. – Vol. 83, suppl. 1. – P. S275–S279.

5–А. Hopping conductivity of metal-dielectric nanocomposites produced by means of magnetron sputtering with the application of oxygen and argon ions / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, J. Fedotova, A. Larkin // Vacuum. – 2009. – Vol. 83, suppl. 1. – P. S280–S283.

6–А. Проводимость на постоянном и переменном токе пленочных нанокомпозитов металл-диэлектрик / Ларькин А.В., Свито И.А., Федотова Ю.А., Федотов А.К. // Вестник БГУ. Сер. 1. Физика. Математика. Информатика. – 2009. – № 1. – С. 26–37.

7–А. An effect of annealing on electric properties of nanocomposites $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ produced by magnetron sputtering in the atmosphere of argon and oxygen beyond the percolation threshold / P. Zhukovski, T. Koltunowicz, J. Fedotova, A. Larkin // Przegląd Elektrotechniczny. – 2010. – Vol. 86, № 7. – P. 157–159.

8–А. Imaginary part of admittance in $(\text{Fe}_{0.45}\text{Co}_{0.45}\text{Zr}_{0.10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(1-x)}$ nanocomposites / A. Larkin, A. Saad, A. Fedotov, J. Fedotova, A. Patryn, B. Andrievski, Z. Czapla, S. Dacko, T.N. Koltunowicz, P. Wegierek // Przegląd Elektrotechniczny. – 2010. – Vol. 86, № 7. – P. 202–204.

9–А. Magnetic properties of nanocomposites $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ / P. Zhukovski, J. Sidorenko, T. Koltunowicz, J. Fedotova, A. Larkin // Przegląd Elektrotechniczny. – 2010. – Vol. 86, № 7. – P. 296–298.

10–А. Касюк, Ю.В. Особенности магнитных, транспортных и магнито-

транспортных свойств нанокompозитов $\text{FeCoZr-Al}_2\text{O}_3$ в области порога перколяции / Касюк Ю.В., Ларькин А.В. // Вестник БГУ. Сер. 1. Физика. Математика. Информатика. – 2010. – № 1. – С. 63–67.

11–А. The features of real part of admittance in the nanocomposites $(\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ manufactured by the ion-beam sputtering technique with Ar ions / T.N. Koltunowicz, P. Zhukowski, V.V. Fedotova, A.M. Saad, A.V. Larkin, A.K. Fedotov // *Acta Physica Polonica (A)*. – 2011. – Vol. 120, № 1. – P. 35–38.

12–А. Formation of noncoil-like inductance in nanocomposites $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ manufactured by ion-beam sputtering of complex targets in $\text{Ar}+\text{O}_2$ atmosphere / P. Zhukowski, T.N. Koltunowicz, P. Wegierek, J.A. Fedotova, A.K. Fedotov, A.V. Larkin // *Acta Physica Polonica (A)*. – 2011. – Vol. 120, № 1. – P. 43–45.

13–А. Касюк, Ю.В. Влияние окисления на механизмы проводимости в нанокompозитах $\text{FeCoZr-Al}_2\text{O}_3$ / Касюк Ю.В., Ларькин А.В., Федотова Ю.А. // Вестник БГУ. Сер. 1, Физика. Математика. Информатика. – 2011. – № 2. – С. 52–57.

14–А. Temperature and frequency dependences of real part of impedance in the FeCoZr-doped PZT nanogranular composites / A.V. Larkin, A.K. Fedotov, J.A. Fedotova, T.N. Koltunowicz, P. Zhukowski // *Materials Science-Poland*. – 2012. – Vol. 30, iss. 2. – P. 75–81.

15–А. Inductive-type properties of $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ nanocomposites produced by the ion-beam sputtering in the argon and oxygen ambient / T.N. Koltunowicz, P. Zhukowski, J.A. Fedotova, A.V. Larkin // *Journal of Nano- and Electronic Physics*. – 2012. – Vol. 4, № 1. – P. 01002-1–01002-4.

16–А. Equivalent circuits for FeCoZr- Al_2O_3 nanocomposite films deposited in argon and oxygen atmospheres / A.V. Larkin, J.A. Fedotova, P. Zukowski, T. Koltunowicz, A.K. Fedotov // *Przegląd Elektrotechniczny*. – 2012. – Vol. 88, № 4a. – P. 93–95.

17–А. Influence of matrix type on negative capacitance effect in nanogranular composite films FeCoZr-insulator / T.N. Koltunowicz, P. Zhukowski, A.K. Fedotov, A.V. Larkin, A. Patryn, B. Andryevskyy, A. Saad, J.A. Fedotova, V.V. Fedotova // *Elektronika ir Elektrotechnika*. – 2013. – Vol. 19, № 4. – P. 37–40.

18–А. Negative capacitance in (FeCoZr)-(PZT) nanocomposite films / T.N. Koltunowicz, J.A. Fedotova, P. Zhukowski, A. Saad, A.K. Fedotov, J.V. Kasiuk, A.V. Larkin // *Journal of Physics D: Applied Physics*. – 2013. – Vol. 46, № 12. – P. 125304-1–125304-10.

19–А. Presence of inductivity in $(\text{CoFeZr})_x(\text{PZT})_{1-x}$ nanocomposite produced by ion beam sputtering / T.N. Koltunowicz, P. Zukowski, O. Boiko, A.K. Fedotov, A.V. Larkin // *Acta Physica Polonica A*. – 2015. – Vol. 128, № 5. – P. 853–856.

20–A. AC hopping conductance in nanocomposite films with ferromagnetic alloy nanoparticles in a PbZrTiO_3 matrix / Koltunowicz T.N., Zukowski P., Boiko O., Saad A., Fedotova J.A., Fedotov A.K., Larkin A.V., Kasiuk J.V. // Journal of Electronic Materials. – 2015. – Vol. 44, № 7. – P. 2260–2268.

21–A. Capacitive properties of nanocomposite $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ produced by sputtering with the use of argon and oxygen ions beam / T.N. Koltunowicz, P. Zukowski, O. Boiko, K. Czarnacka, V. Bondariev, A. Saad, A.V. Larkin, A.K. Fedotov // Journal of Materials Science: Materials in Electronics. – 2016. – Vol. 27, iss. 2. – P. 1171–1176.

22–A. The effect of sputtering atmosphere parameters on dielectric properties of the ferromagnetic alloy – ferroelectric ceramics nanocomposite $(\text{FeCoZr})_x(\text{PbZrTiO}_3)_{(100-x)}$ / O. Boiko, T.N. Koltunowicz, P. Zukowski, A.K. Fedotov, A.V. Larkin // Ceramics International. – 2017. – Vol. 43, iss. 2. – P. 2511–2516.

23–A. Larkin, A.V. Equivalent circuits of FeCoZr-alloy nanoparticles deposited into Al_2O_3 and PZT dielectric matrices nanogranular composite films / Larkin A.V., Fedotov A.K. // Journal of the Belarusian State University. Physics. – 2022. – №3. – P. 104–112.

24–A. Larkin, A.V. Hopping transport in nanogranular composite films of FeCoZr alloy nanoparticles deposited into Al_2O_3 and PZT dielectric matrices / Larkin A.V., Fedotov A.K. // Journal of the Belarusian State University. Physics. – 2023. – №1. – P. 70–77.

Статьи в сборниках материалов научных конференций

25–A. Influence of oxygen on magnetoimpedance of nanocomposites $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ / J. Fedotova, A. Larkin, A. Fedotov, A. Kalaev, A. Sitnikov, Yu. Kalinin, B. Andrievski, A. Patrin // Physics, chemistry and application of nanostructures : proc. of the Internat. conf. on Nanomeeting 2007, Minsk, 22–25 May 2007 / Ed.: V.E. Borisenko, S.V. Gaponenko and V.S. Gurin. – Minsk, 2007. – P. 62–65.

26–A. Проводимость на переменном токе нанокомпозитов $\text{FeCoZr-Al}_2\text{O}_3$ на металлической стороне перехода металл-диэлектрик / Ларькин А.В., Федотова Ю.А., Андриевский Б.В., Патрин А.А., Федотов А.К., Калинин Ю.Е., Ситников А.В. // Актуальные проблемы физики твердого тела : сб. докл. Межд. научн. конф. ФТТ-2007, Минск, 23–26 октября 2007 / БГУ. – Минск, 2007. – Т. 1. – С. 145–147.

27–A. Experimental verification of a model of hopping conductivity at alternating current in nano-composites produced by ion-beam sputtering / T. Koltunowicz, P. Zukowski, J.A. Fedotova, A.V. Larkin // Radiation interaction with material and its use in technologies 2008 : proc. of Internat. conf., Kaunas,

24–27 September 2008 / Kaunas University of Technology. – Kaunas, 2008. – P. 274–278.

28–A. Scanning probe microscopy of CoFeZr-alumina nanocomposites / A. Saad, J. Fedotova, L. Baran, I. Svito, A. Larkin, A. Fedotov, S. Kovaliova, E. Mosunov // Physics, chemistry and application of nanostructures : proc. of the Internat. conf. on Nanomeeting 2009, Minsk, 26–29 May / Edit. V.E. Borisenko, S.V. Gaponenko and V.S. Gurin. – 2009. – P. 244–247.

29–A. Influence of nitrogen on high-frequency permeability of soft magnetic nanoparticles embedded into alumina matrix / A. Larkin, Yu. Ilyashuk, V. Kalaev, Yu. Kalinin, A. Sitnikov, K. Sitnikov // Physics, chemistry and application of nanostructures : proc. of the Internat. conf. on Nanomeeting 2009, Minsk, 26–29 May 2009 / Edit. V.E. Borisenko, S.V. Gaponenko and V.S. Gurin. – 2009. – P. 260–263;

30–A. Structure and resistivity of FeCoZr-dielectric granular nanocomposites sintered in mixed Ar+O atmosphere / J.Fedotova, Yu.Kasiuk, A.Larkin, J.Przewoznik, Cz.Kapusta, Yu.Kalinin // Information Technology and Electrical Engineering – Devices and Systems, Materials and Technologies for the Future : proc. of 54th Internat. Scientific Colloquium, Ilmenau, Germany, 07–10 September 2009 / Technische Universitat Ilmenau. – Ilmenau, 2009 – P. 3–9.

31–A. Impedance Spectroscopy of FeCo Alloy Nanoparticles in Alumina and PZT / A.V. Larkin, A.K. Fedotov, P. Zhukowski, T.N. Koltunowicz // Actual Problems of Solid State Physics : proc. of IX Internat. scientific conf., Minsk, 22–26 November 2021 / SSPA «Scientific-Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus» ; ed.: V.M. Fedosyuk (chairman) [et al.]. – Minsk, 2021. – B. 1. – P.180–184.

32–A. Negative Capacitance Effect in Nanogranular Composite Films of FeCoZr-alloy Nanoparticles Deposited into Al₂O₃ and PZT Matrices / A.V. Larkin, A.K. Fedotov // Actual Problems of Solid State Physics : proc. of X Internat. scientific conf., Minsk, 22–26 May 2023 / SSPA «Scientific-Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus» ; ed.: V.M. Fedosyuk (chairman) [et al.]. – Minsk, 2023. – P.590–593.

Тезисы докладов

33–A. Адмиттанс-спектроскопия нанокомпозитов (Co_{0.45}Fe_{0.45}Zr_{0.10})_x(Al₂O₃)_{1-x} / А.К. Федотов, А.В. Ларькин, Ю.А. Федотова, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников // II Всероссийская конференция по наноматериалам : тез. докл., Новосибирск, 13–16 марта 2007 г. / Новосибирск, 2007. – С. 314.

34–A. Impedance Spectroscopy Study of Amorphous Composites x(Fe_{0.45}Co_{0.45}Zr_{0.10})+(1-x)(Al₂O₃) / B. Andriyevsky, A. Patryn, Z. Czaplá, S. Dacko, J.A. Fedotova, A.V. Larkin, A.K. Fedotov // New Electrical and Electronical Technologies and their Industrial Implementation : proc. of 5th Internat. conf.,

Zakopane, 12–15 June 2007 / Lublin University of Technology. – Lublin, 2007. – P. 84.

35–A. The Effect of Annealing Temperature on Electrical Properties of Nanocomposites $\text{CoFeZr} + \text{Al}_2\text{O}_3$ / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, P. Wegierek, J.A. Fedotova, A.K. Fedotov, A.V. Larkin // New Electrical and Electronical Technologies and their Industrial Implementation : proc. of 5th Internat. conf., Zakopane, 12–15 June 2007 / Lublin University of Technology. – Lublin, 2007. – P. 140.

36–A. A Model of Hopping Recharging at Alternating and Direct Currents and Its Experimental Verification / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, P. Wegierek, M. Kolasik, A. Wdowiak, A.V. Larkin, J.A. Fedotova, A.K. Fedotov, F.F. Komarow, L.A. Vlasukova // New Electrical and Electronical Technologies and their Industrial Implementation : proc. of 5th Internat. conf., Zakopane, 12–15 June 2007 / Lublin University of Technology. – Lublin, 2007. – P. 141.

37–A. Electrical properties of nanostructures $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, Yu.A. Fedotova, A.K. Fedotov, A.V. Larkin // Ion Implantation and Other Applications of Ions and Electrons : proc. of VII Internat. conf., Kazimierz Dolny, 16–19 June 2008 / Maria Curie-Sklodowska University. – Lublin, 2008. – P. 179.

38–A. Hopping conductivity of metal-dielectric nano-composites produced by means of magnetron sputtering with the application of oxygen and argon gas / P. Zukowski, T. Koltunowicz, J. Partyka, Yu.A. Fedotova, A.K. Fedotov, A.V. Larkin // Ion Implantation and Other Applications of Ions and Electrons : proc. of VII Internat. conf., Kazimierz Dolny, 16–19 June 2008 / Maria Curie-Sklodowska University. – Lublin, 2008. – P. 180.

39–A. Influence of Sputtering Ambient on Impedance and Magneto-impedance of Soft Magnetic CoFeZr Nanoparticles Embedded in Alumina Matrix / A. Saad, J. Fedotova, A. Larkin, Yu. Kalinin, A. Sitnikov, V. Fedotova, Yu. Ilyashuk, A. Fedotov // Fourth Seeheim Conference on Magnetism : abstracts, Frankfurt, 28 March – 1 April 2010 / Karlsruhe Institute of Technology. – Germany, 2010 – P. 276–277.

40–A. The Formation of Noncoil-like Inductance in Nanocomposites $(\text{Fe}_{45}\text{Co}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{(1-x)}$ Manufactured by Ion-beam Sputtering of Complicated Targets in $\text{Ar}+\text{O}_2$ Atmosphere / P. Zhukowski, T. Koltunowicz, P. Wegierek, J. Fedotova, A. Larkin, A. Fedotov // Ion Implantation and Other Applications of Ions and Electrons : proc. of VIII Internat. conf., Kazimierz Dolny, 14–17 June 2010 / Polish Academy of Sciences. Institute of Physics. – Warsaw, 2010. – P. 116.

41–A. Dielectric properties and model of the impedance formation of $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ nanocomposites produced by means of ion sputtering

/ P. Zukowski, T. Koltunowicz, O. Boiko, A.K. Fedotov, J.A. Fedotova, A.V. Larkin // Science and Applications of Thin Films : proc. of Conf. and Exhib., Cesme, Izmir, 15–19 September 2014 / Izmir Institute of Technology. – Elsevier, 2014. – P. 313.

42–A. Resonance properties at alternating current of nanocomposite $(\text{CoFeZr})_x(\text{CaF}_2)_{(100-x)}$ produced by ion beam sputtering / T. Koltunowicz, P. Zukowski, V. Bondariev, A.V. Larkin, A.K. Fedotov, J.A. Fedotova // Science and Applications of Thin Films : proc. of Conf. and Exhib., Cesme, Izmir, 15–19 September 2014 / Izmir Institute of Technology. – Elsevier, 2014. – P. 314.

43–A. Negative Capacitance Effect in Nanogranular Composite Films of FeCoZr-alloy Nanoparticles Deposited into Al_2O_3 and PZT Matrices / A.V. Larkin, A.K. Fedotov // Actual Problems of Solid State Physics : book of abstracts of X Internat. scientific conf., Minsk, 22–26 May 2023 / SSPA «Scientific-Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus». – Minsk, 2023. – P. 235.

Патенты

44–A. Sposob wytwarzania bezuzwojeniowych indukcyjnosci do ukladow mikroelektronicznych : пат. PL 390789 / P. Zhukowski, T.N. Koltunowicz, A. Fedotov, J. Fedotova, A. Larkin. – Оpubл. 22.03.2010.

45–A. Sposyb wytwarzania szeregowego ukkladu pojemnosc-indukcyjnosc do ukladyw mikroelektronicznych : пат. PL 391039 / P. Zhukowski, T.N. Koltunowicz, P. Wegierek, A. Fedotov, J. Fedotova, A. Larkin. – Оpubл. 22.04.2010.

46–A. Способ получения тонких плёнок с импедансом индуктивного типа : пат. ВУ 17897 / А. К. Федотов, П. В. Жуковский, Ю. А. Федотова, Т. Колтунович, А. А. Максименко, А. В. Ларькин. – Оpubл. 28.02.2014.

РЕЗЮМЕ

Ларькин Андрей Викторович

АДМИТТАНС-СПЕКТРОСКОПИЯ НАНОГРАНУЛИРОВАННЫХ КОМПОЗИЦИОННЫХ ПЛЕНОК $\text{FeCoZr-Al}_2\text{O}_3$ И FeCoZr-PZT

Ключевые слова: адмиттанс-спектроскопия, гранулярные плёночные нанокомпозиты, прыжковая проводимость, эффект отрицательной ёмкости.

Цель работы: установление основных особенностей влияния морфологии (формы, размеров и характера распределения), химического (тип металла и диэлектрика, концентрация атомов в металлическом сплаве и диэлектрической матрице) и фазового (вид и соотношение участвующих компонент) состава гранулярных плёночных нанокомпозитов (ПНК) типа $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ и $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (ПНК- Al_2O_3 и ПНК-PZT соответственно) на перенос электронов на переменном токе в зависимости от частоты переменного электрического поля и температуры с реализацией эффекта отрицательной ёмкости.

Методы исследования: адмиттанс-спектроскопия, 4-зондовый метод, мёссбауэровская спектроскопия, сканирующая электронная микроскопия и др.

Полученные результаты и их новизна: 1) показано, что для описания ПНК, представляющих из-за образования в процессе синтеза и (или) отжига на воздухе полупроводниковых (FeO , Fe_3O_4) и диэлектрических (Fe_2O_3) оболочек из оксидов Fe вокруг ядер металлических наночастиц трёхфазные системы, необходимо использовать две критических перколяционных характеристики – порог касания x_{c1} оболочек и порог формирования из наночастиц сплошного проводящего кластера x_{c2} ; 2) обнаружена особая роль полупроводниковых оксидов FeO , Fe_3O_4 вокруг металлических ядер в возникновении эффекта отрицательной ёмкости в ПНК: их преобладание в окрестности x_{c1} приводит к увеличению характерного времени локализации электронов τ на наночастицах, однако *лишь* при наличии между ними диэлектрических прослоек из матрицы или оксида Fe_2O_3 , что сопровождается величинами характерной энергии активации ΔE процесса прыжка электрона порядка $k_B T$; 3) установлено, что при преобладании в окрестности x_{c1} в оболочках оксидов FeO и Fe_3O_4 наряду с наличием диэлектрических прослоек либо матрицы, либо оксида Fe_2O_3 между ними эквивалентные схемы замещения ПНК включают в себя *два* резонансных RCL-контура, что сопровождается значениями $\theta > 0$.

Область применения: материаловедение, нанoeлектроника, спинтроника.

РЭЗІЮМЭ

Ларкін Андрэй Віктаравіч

АДМІТТАНС-СПЕКТРАСКОПІЯ НАНАГРАНУЛЯВАНЫХ КАМПАЗІЦЫЙНЫХ ПЛЁНАК $\text{FeCoZr-Al}_2\text{O}_3$ І FeCoZr-PZT

Ключавыя словы: адмітанс-спектраскапія, гранулярныя плёнкавыя нанакампазіты, скачковая праводнасць, эфект адмоўнай ёмістасці.

Мэта працы: усталяванне асноўных асаблівасцяў уплыву марфалогіі (формы, памераў і характару размеркавання), хімічнага (тып металу і дыэлектрыка, канцэнтрацыя атамаў у металічным сплаве і дыэлектрычнай матрыцы) і фазавага (выгляд і суадносіны кампанент, якія ўдзельнічаюць) складу гранулярных плёнкавых нанакампазітаў (ПНК) тыпу $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ і $(\text{Fe}_{0,45}\text{Co}_{0,45}\text{Zr}_{0,10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (ПНК- Al_2O_3 і ПНК-PZT адпаведна) на перанос электронаў на пераменным току ў залежнасці ад частаты пераменнага электрычнага поля і тэмпературы з рэалізацыяй эфекту адмоўнай ёмістасці.

Метады даследавання: адмітанс-спектраскапія, 4-зондавы метад, месбаўэраўская спектраскапія, сканавальная электронная мікраскапія і інш.

Атрыманыя вынікі і іх навізна: 1) паказана, што для апісання ПНК, якія прадстаўляюць з-за ўтварэння падчас сінтэзу і (або) адпалу на паветры паўправадніковых (FeO , Fe_3O_4) і дыэлектрычных (Fe_2O_3) абалонак з аксідаў Fe вакол ядраў металічных наначасціц трохфазныя сістэмы, неабходна выкарыстоўваць дзве крытычных перкаляцыйных характарыстыкі – парог дотыку x_{c1} абалонак і парог фарміравання з наначасціц суцэльнага праводзіць кластара x_{c2} ; 2) выяўлена асаблівая роля паўправадніковых аксідаў FeO , Fe_3O_4 вакол металічных ядраў ва ўзнікненні эфекту адмоўнай ёмістасці ў ПНК: іх перавага ў наваколлі x_{c1} прыводзіць да павелічэння характэрнага часу лакалізацыі электронаў τ на наначасціц, аднак *толькі* пры наяўнасці паміж імі дыэлектрычных праслоек з матрыц або аксиду Fe_2O_3 , што суправаджаецца велічынямі характэрнай энергіі актывацыі ΔE працэсу скачку электрона парадку $k_B T$; 3) устаноўлена, што пры перавазе ў наваколлі x_{c1} у абалонках аксідаў FeO і Fe_3O_4 нароўні з наяўнасцю дыэлектрычных праслоек альбо матрыцы, альбо аксиду Fe_2O_3 паміж імі эквівалентныя схемы замяшчэння ПНК складаюцца з двух рэзанансных RCL-контураў, што суправаджаецца значэннямі $\theta > 0$.

Вобласць ужывання: матэрыялазнаўства, нанаэлектроніка, спінтроніка.

SUMMARY

Larkin Andrei Victorovich

ADMITTANCE SPECTROSCOPY OF NANOGRANULATED COMPOSITE FILMS FeCoZr-Al₂O₃ AND FeCoZr-PZT

Keywords: admittance spectroscopy, granular film nanocomposites, hopping conductivity, negative capacitance effect.

The work objective: to establish the main features of morphology (shape, size and type of distribution), chemical (type of metal and dielectric, concentration of atoms in a metal alloy and dielectric matrix) and phase (type and ratio of participating components) composition of granular film nanocomposites (FNC) of the $(\text{Fe}_{0.45}\text{Co}_{0.45}\text{Zr}_{0.10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ and $(\text{Fe}_{0.45}\text{Co}_{0.45}\text{Zr}_{0.10})_x(\text{PZT})_{1-x}$ (FNC-Al₂O₃ and FNC-PZT respectively) types influence on the transfer of electrons under the action of an alternating electric field of different frequencies and temperature.

Methods of investigation: admittance spectroscopy, the 4-probe method, Mössbauer spectroscopy, scanning electron microscopy, etc.

The obtained results and their novelty: 1) it is shown that in order to describe FNCs, which represent three-phase systems due to the formation of semiconductor (FeO, Fe₃O₄) and dielectric (Fe₂O₃) shells of Fe oxides around the cores of metallic nanoparticles during the synthesis and/or annealing in air, it is necessary to use *two* critical percolation characteristics – the threshold of contact x_{c1} of the shells and the threshold of formation of a continuous conducting cluster from nanoparticles x_{c2} ; 2) a special role of semiconductor oxides FeO, Fe₃O₄ around metal cores in the occurrence of the negative capacitance effect in FNCs was discovered: their predominance in the vicinity of x_{c1} leads to an increase in the characteristic time of electron localization τ on nanoparticles, but *only* in the presence of dielectric layers of matrix or Fe₂O₃ oxide between them, which is accompanied by values of the characteristic activation energy ΔE of the electron hopping process of the order of $k_B T$; 3) it was established that with the predominance of FeO and Fe₃O₄ oxides in the vicinity of x_{c1} in the shells, along with the presence of dielectric layers of either the matrix or the Fe₂O₃ oxide between them, the equivalent circuits of the FNCs include *two* resonant RCL-circuits, which is accompanied by values of $\theta > 0$.

Application field: materials science, nanoelectronics, spintronics.



Подписано в печать 19.12.2024. Формат 60×84 $\frac{1}{16}$. Бумага офсетная.
Цифровая печать. Усл. печ. л. 1,63. Уч.-изд. л. 1,75.
Тираж 70 экз. Заказ 286.

Отпечатано с оригинала-макета заказчика
в республиканском унитарном предприятии
«Издательский центр Белорусского государственного университета».
Свидетельство о государственной регистрации издателя, изготовителя,
распространителя печатных изданий № 2/63 от 19.03.2014.
Ул. Красноармейская, 6, 220030, Минск.