## МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ ИМЕНИ М. В. ЛОМОНОСОВА ФИЗИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ

#### АНОМАЛЬНЫЙ ЭФФЕКТ ХОЛЛА В ВЫСОКОРЕЗИСТИВНЫХ ФЕРРОМАГНЕТИКАХ:

#### СПЛАВЫ ГЕЙСЛЕРА Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub>

И

#### НАНОГРАНУЛИРОВАННЫЕ ПЛЕНКИ $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{100-x}(Al-O)_{100-x}$

Дипломная работа

студента 6 курса

кафедры магнетизма

Меттуса Дениса Евгеньевича

Научный руководитель:

#### доктор физико-математических наук

профессор ГРАНОВСКИЙ А. Б.

Допущен к защите \_\_\_\_\_ 2013г

Зав. кафедры магнетизма

Профессор

А.В. Ведяев

Москва - 2013

## Оглавление

введен	ИЕ	3
ГЛАВА 1	I. ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР	4
1.1 Магни	итотранспортные явления	
1.1.1	Основные представления о магнитотранспортных я	влениях в
	ферромагнетиках. Магнитосопротивление	4
1.1.2	Эффект Холла и его основные механизмы	5
1.1.3	Эффект Холла в высокорезистивных гетерогенных системах. Эд	bфект Холла
	в сплавах Гейслера	
1.1.4	Эффект Холла гранулированных нанокомпозитах	12
1.2 Нанок	сомпозитые материалы металл-диэлектрик	18
1.2.1	Основные представления	
1.2.2	Структурные свойства гранулированных нанокомпозитных	материалов
	металл-диэлектрик	
1.2.3	Магнитные свойства	20
1.3 Сплав	ы Гейслера	
1.3.1	Основные представления	
1.3.2	Структурные свойства и мартенситные фазовые переходы	
1.3.3	Магнитные свойства сплавов Гейслера	24
1.3.4	Магнитотранспортные свойства сплавов Гейслера	25
ГЛАВА 2	2. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ И ИССЛЕДУЕМЫЕ ОБ	РАЗЦЫ26
2.1 Изучен	ние магнитных свойств	
0 0 TT		•

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	46
выводы	45
3.2 Нанокомпозитные материалы	40
3.1 Сплавы Гейслера	
ГЛАВА З. ЭКСПЕРИМЕТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ	35
2.5 Сплавы Гейслера	34
2.4 Гранулированные нанокомпозитные материалы	33
2.3 Определение коэффициентов Холла	31
2.2 Изучение магнитотранспортных свойств	

#### Введение

Аномальный эффект Холла (АЭХ) является ярким представителем спин-зависящих явлений переноса. Непрерывный на протяжении уже более 130 лет интерес к этому фундаментальных проблем явлению связан как с целым рядом физики конденсированного состояния и физики магнитных явлений, так и с его перспективами в практическом применении. Необходимо отметить, что этот эффект является, во-первых, центральным в группе четных по намагниченности гальвано- и термомагнитных эффектов и, во-вторых, низкочастотным аналогом всех нечетных магнитооптических эффектов. Особую значимость изучению АЭХ придает то, что механизмы АЭХ и спинового эффекта Холла, рассматриваемого как наиболее перспективный способ бездиссипативного управления спиновыми токами в спинтронике и генерации спиновых волн в магнонике, являются тождественными. Следует также подчеркнуть, что в исследованиях разбавленных магнитных полупроводников наличие АЭХ принято считать основным доказательством спиновой поляризации носителей тока, и то, что АЭХ используется в магнитометрии тонких пленок и в сенсорах магнитного поля.

Так как АЭХ - квантовое явление и не описывается квазиклассическим уравнением Больцмана, то построение теории АЭХ привело к созданию квантовой теории явлений переноса (метод матрицы плотности), а также к развитию представлений о фазе Берри в импульсном пространстве.

Разработанные представления о механизмах АЭХ позволили объяснить совокупность имеющихся экспериментальных данных для низкорезистивных гомогенных металлов и сплавов, однако для высокорезистивных или гетерогенных систем поведение АЭХ не описывается ни одним из предложенных механизмов. До сих пор нет понимания эффекта гигантского АЭХ, наблюдаемого в нанокомпозитах "металл-диэлектрик" вблизи порога перколяции.

Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию АЭХ двух высокорезистивных систем, а именно, сплавам Гейслера Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub> и нанокомпозитам (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub>(Al-O)<sub>100-x</sub>. Целью работы явилось определение коэффициентов нормального и аномального эффектов Холла этих систем на основе комплексных исследований намагниченности, сопротивления, магнитосопротивления, сопротивления Холла и установление возможных типов корреляций между АЭХ и сопротивлением.

#### Глава 1. Литературный обзор

#### 1.1 Магнитотранспортные явления

# 1.1.1 Основные представления о магнитотранспортных явлениях в ферромагнетиках. Магнитосопротивление

Магнитотранспортные (гальваномагнитные) явления представляют собой группу явлений, возникающих при протекании электрического тока через образец, находящийся во внешнем магнитном поле. Исследование таких магнитотраспортных явлений, как магнитосопротивление (MC) и эффект Холла (ЭХ) дает информацию как о механизмах проводимости материала, так и о природе магнетизма.

Магнитосопротивление - изменение электросопротивления в магнитном поле, количественно выражается как  $\Delta \rho = \frac{\rho(H \neq 0) - \rho(H = 0)}{\rho(H = 0)}$ . Данный эффект наблюдается во многих проводящих средах (металлы, металлические сплавы, полупроводники), однако, в гомогенных материалах величина не превышает нескольких процентов, а в большинстве случаев составляет лишь доли процентов.

МС неферромагнитных материалов, как правило, положительно, связано с действием силы Лоренца и не зависит от ориентации векторов напряженности магнитного поля и плотности тока, проходящего через образец [1].

В ферромагнетиках, кроме Лоренцевского вклада в МС, присутствуют еще два основных вклада. Это, во-первых, МС при истинном намагничивании ферромагнетиков, при котором уменьшается беспорядок в спиновой системе, и, следовательно, уменьшается и вероятность рассеяния электронов на магнитных неоднородностях, что ведет к отрицательному МС. Во-вторых, анизотропное МС, обусловленное анизотропией электросопротивления - зависимостью сопротивления от взаимной ориентации спонтанной намагниченности и плотности тока. Также существует большое количество других механизмов МС, таких как: МС доменных границ, МС при эффекте Кондо, отрицательное МС за счет подавления полем слабой локализации и электрон-электронных корреляций при низких температурах.

Интерес к явлению МС радикально изменился, когда уровень развития технологии позволил получать гетерогенные многофазные материалы с масштабом неоднородностей от единиц до десятков нанометров. В работе [2] были исследованы системы решеток Fe/Cr/Fe, величина МС в которых достигала 80%. В последствии в работе [3] для мультислоев Co<sub>95</sub>Fe<sub>5</sub>/Cu до МС достигало 110%. Столь большой эффект в гетерогенных

металлических системах, обусловленный спин-зависящим рассеянием, получил название – гигантское магнитосопротивдение (ГМС).

Второй случай больших значений МС в гетерогенных структурах - колоссальное магнитосопротивление (КМС), которое было найдено в сложных многокомпонентных оксидных соединениях со структурой перовскита. В манганитах лантаноида  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$  было получено МС до 127000% при температурах порядка 77 К и до 1300% при комнатных температурах [4]. Данный эффект, обусловлен с индуцированием магнитным полем фазового перехода из низкопроводящей фазы в высокопроводящую. Однако данный магнитоиндуцированный фазовый переход происходит в сильных полях, что ограничивает его практическое применение.

Третий случай больших значений MC – случай туннельного магнитосопротивления (TMC), имеющий место в структурах металл-диэлектрик, когда спин-зависящий перенос носителей заряда осуществляется за счет туннелирования. ТМС, наряду с ГМС, последнее время находит широкое применение в качестве материала для магнитных датчиков, а также в магниторезистивной памяти. Величина данного эффекта достигает сотен процентов. Один из классов материалов, в которых реализуется TMC - это наногранулированные сплавы металл-диэлектрик, которые также называют нанокомпозитами (в англоязычной литературе иногда используется термин "кермет"), содержащие ферромагнитную металлическую фазу в виде изолированных друг от друга наноразмерных гранул, диспергированных в объеме диэлектрической матрицы.

Хотя в данной работе не ставится целью глубокое изучение механизмов и присущих им черт МС в сплавах Гейслера и гранулированных нанокомпозитах, исследование данного эффекта в настоящей работе является актуальным по нескольким причинам. Вопервых, исследование МС в данных составах как сплавов Гейслера, так и нанокомпозитов проводится впервые. Во-вторых, МС, будучи четным эффектом по намагниченности, при большой величине может оказывать сильное влияние на величину, полевую и температурную зависимость сопротивления Холла, поэтому исследование МС и эффекта Холла на одних и тех же образцах во многих случаях является необходимым.

#### 1.1.2 Эффект Холла и его основные механизмы

Эффект Холла был впервые обнаружен Эдвином Холлом в 1879 году в золотой пластинке [5] и заключался в появлении поперечной разности потенциалов  $E_y$ , возникающей при приложении магнитного поля Н перпендикулярно линии тока I в образце (рис. 1).

Впоследствии данный эффект в неферромагнитных металлах и полупроводниках был назван нормальным эффектом Холла (НЭХ). Причина возникновения эффекта заключается в действии силы Лоренца на движущиеся в магнитном поле заряды, которая отклоняет электроны по оси Y к боковой грани образца. Данное открытие породило простой и элегантный метод определения концентрации и знака носителей заряда и сыграло решающую роль в становлении физики полупроводников и твердотельной электроники в 1940-ых годах.



Рис.1 Схематичное изображение эффекта Холла [6]

Немного позже в железе был открыт аномальный эффект Холла (АЭХ). При исследовании эффекта в ферромагнитном образце [7] Холл обнаружил, что его величина оказалась больше в 10 раз по сравнению с неферромагнитными материалами. Позднее Холл описал две основные особенности эффекта в ферромагнетиках: ЭДС Холла непропорциональна величине напряженности внешнего магнитного поля, как это происходит с НЭХ, и сильно зависит от температуры. Как оказалось, природа данного эффекта более сложная, чем в НЭХ. На данный момент предложено несколько механизмов АЭХ, описание которых механизмов изложено ниже.

Различие в поведении НЭХ и АЭХ можно увидеть на рис. 2, на котором приведены зависимости сопротивления Холла от внешнего магнитного поля при различных температурах [8]. Из результатов следует, что выше температуры Кюри (например, при температурах 395 и 410 °C), когда никель становится парамагнетиком, зависимость сопротивления Холла линейная. Ниже температуры Кюри (например, при температурах на графике 300 и 355 °C), когда никель находится в ферромагнитном состоянии, сначала

происходит быстрое увеличение величины эффекта в слабых полях, а в сильных происходит насыщение. Кундт показал [9], что для Fe, Ni и Co значение сопротивления Холла в магнитных полях насыщения пропорционально намагниченности *M<sub>Z</sub>*.



**Рис.2** Полевые зависимости сопротивления Холла никеля при разных температурах [8]

Позднее, в 1932 году, Пугх и Липперт [10] вывели широко известную эмпирическую связь между  $\rho_{xy}$ ,  $B_Z$  и  $M_Z$ :

$$\rho_{xy} = R_0 B_z + 4\pi R_s M_z,$$

которая применима для многих материалов в широком диапазоне магнитных полей и температур. Первое слагаемое отображает линейный по магнитному полю вклад НЭХ, где  $R_0$  – коэффициент НЭХ и  $B_z$  – компонента магнитной индукции,

$$B_z = H_z + 4\pi M_z (1-N),$$

где N – размагничивающий фактор.

Второе слагаемое – линейный по намагниченности материала вклад АЭХ, где соответственно  $R_s$  – коэффициент АЭХ и  $M_z$  – компонента намагниченности. В отличие от  $R_0$ , который зависит в основном от концентрации носителей заряда,  $R_s$  зависит от множества специфических параметров и, как правило, от электросопротивления  $\rho$ .

Расписав тензор проводимости и применив выражение  $\rho_{xy}$ , получим:

$$R_0 = \frac{\sigma_{xy}(B_z)}{B_z(\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2)} \approx \frac{\sigma_{xy}(B_z)}{B_z}\rho^2$$

$$R_s = \frac{\sigma_{xy}(M_z)}{4\pi M_z(\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2)} \approx \frac{\sigma_{xy}(M_z)}{4\pi M_z} \rho^2,$$

где  $\sigma_{xy}$  – Холловская проводимость,  $\sigma_{xx}$  – электропроводность материала.

В 1954 году Карплус и Латтенжер (далее КЛ) [11] показали, что в твёрдом теле при наличии спин-орбитального взаимодействия в электрическом поле возникает дополнительный вклад в групповую скорость электронов. Аномальная скорость КЛ перпендикулярна электрическому полю и может давать вклад в эффект Холла. В ферромагнитных проводниках сумма аномальных скоростей всех занятых электронных состояний может быть отличной от нуля, что соответствует вкладу в холловскую проводимость  $\sigma_{xy}$ . Так как этот вклад зависит только от зонной структуры идеального кристалла и никак не зависит ни от концентрации примесей, ни от вида и величины потенциала рассеяния, он был позднее назван собственным (intrinsic) вкладом в АЭХ. И поэтому для любых ферромагнетиков и при любых температурах должно выполняться следующее соотношение:  $(\sigma_{xy})^{KL} \sim \sigma_{xx}^0$  и, следовательно,  $\rho_{xy} \sim \rho^2$ . Механизм фазы Берри, сначала позиционируемый как новый механизм АЭХ, оказался полностью тождественным механизму КЛ, просто конечные формулы задаются в терминах фазы и кривизны [12].

Основная критика КЛ теории основана на полном отсутствии в ней рассеяния на неоднородностях. Смит в работах [13], [14] посчитал, что вклад механизма КЛ должен полностью компенсироваться другими членами в решениях кинетического уравнения при учете рассеяния, и предложил, что основной вклад в АЭХ дает ассиметричное рассеяние на примесях. Механизм ассиметричного рассеяния заключается в том, что при наличии спин-орбитального взаимодействия (далее СОВ), собственного или несобственного, периодического или непериодического, вероятность рассеяния электрона В противоположных направлениях по оси у при направлении движения по оси х становится зависящей от направления его спина по оси z. При рассеянии на примесях и T = 0, в случае если концентрация примесей мала (с  $\ll$  1) и рассеяние на них слабое ( $\frac{V}{E_{e}} \ll$  1), этот механизм приводит к зависимости:

$$(R_s)^{SC} = a\rho_0 + b\rho_0^2$$

где  $\rho_0$  – остаточное сопротивление  $\rho_0 \sim c$ , второй член существенно меньше первого и имеет противоположный знак. Такое представление прогнозирует  $R_S \sim \rho_{xx}$ .

Однако в случае сильного рассеяния  $\frac{v}{E_f} \leq 1$  и если концентрация примесей не очень мала, оба члена могут быть одного порядка величины и одного знака. В концентрированных сплавах данное выражение не выполняется [15] [16], и при слабом рассеянии  $(R_s)^{SC}$ меняет знак в области средних концентраций.

Бергер [17], с другой стороны, утверждал, что основным вкладом в АЭХ является боковой скачок (боковое смещение), т.е. скачкообразное изменение траектории, испытываемое квазичастицами при рассеянии на примеси из-за действия СОВ. Формально в этом механизме, так же как в механизме КЛ, отсутствует зависимость от концентрации примеси, от величины рассеяния и от типа рассеяния (примесь, фонон, магнон и т.д.). Как результат, при механизме бокового смещения выполняется  $R_S \sim \rho_{xx}^2$ , как в теории КЛ. Изза такого сходства в ранних работах механизмы бокового скачка и собственный механизм не разделялись. Латтинжер показал, что в соответствии с аргументами Смита в [13], [14] коэффициенты перед зависимостями коэффициента АЭХ от сопротивления за счет собственного механизма и механизма бокового смещения имеют разные знаки. Однако полного сокращения не происходит даже для простой, рассмотренной в [18] модели.

Три основных рассмотренных механизма схематично приведены на рис. 3.



Рис.3 Иллюстрация трёх основных механизмов АЭХ [12].

Однако, рассматривая все три вышеизложенных механизма, остается открытым вопрос о разделения их вкладов и понимания, какой именно механизм доминирует в каждой конкретной ситуации.

В низшем порядке по параметру  $\frac{v}{E_f} \ll 1$  и малой концентрации примесей и T=0 определяющим является механизм асимметричного рассеяния, что следует из теории и подтверждается экспериментом в [15], [12], [16]. По мере увеличения концентрации примесей и потенциала рассеяния возникает уже несколько вкладов, соответствующих вышеописанным механизмам. При этом линейная зависимость коэффициента АЭХ от сопротивления меняется на квадратичную, причем все три механизма могут дать такую зависимость в одном и том же порядке по потенциалу рассеяния, и построение зависимости  $R_S \sim \rho_{xx}^m$  из экспериментальных данных не позволяет определить основной механизм.

Авторы работы [12] предлагают считать квадратичный по сопротивлению механизм асимметричного рассеяния спрятанным за механизмом бокового смещения, т.е. вообще не рассматривать, что не совсем корректно по исходному определению асимметричного рассеяния. Также в данной работе предлагают такой подход: рассчитывается вклад механизма КЛ, и если он даст количественное описание эксперимента, то предполагается возможным считать этот вклад основным. Были произведены расчеты из первых принципов собственного механизма АЭХ для ОЦК (кубическая объёмно-центрированная решетка) железа в [19] и [20], из которых получили  $\sigma_{xv} \sim 7.5 * 10^2 (Ohm * cm)^{-1}$ , что совпадает с экспериментом. Также были рассчитаны значения для ГЦК (кубическая гранецентрированная решетка) никеля и ГПУ (гексагональная плотноупакованная структура) кобальта [21], а именно  $\sigma_{xy} \sim 4.8 *$  $10^2 (Ohm * cm)^{-1}$  и  $\sigma_{xy} \sim -2.2 * 10^2 (Ohm * cm)^{-1}$  для никеля и кобальта соответственно. В то время как для кобальта, так и для железа, результат совпал с экспериментальным, для никеля же рассчитанное значение составило лишь 30% от измеренного в эксперименте.

Оба подхода не совсем корректны, так как, во-первых, механизм КЛ частично или полностью компенсируется механизмом бокового смещения, а во-вторых, не исключено, что и асимметричное рассеяние, расчет которого существенно труднее, также дает количественное описание эксперимента. Более того, в случае высокорезистивных сплавов, коэффициент остаточного АЭХ неупорядоченных сплавов Ni-Pd, Fe-Pd, Ni-Fe меняет знак в области средних концентраций [15], проходя через ноль, что соответствует механизму асимметричного рассеяния и противоречит механизмам КЛ и бокового прыжка.

Также стоит отметить, что при конечных температурах разделение вкладов различных механизмов усложняется неприменимостью правила Маттиссена к АЭХ, что впервые было указано Кондорским [15].

По классификации Нагаосы [12], если материал имеет сопротивление  $\rho_{xx} < 1$  мкОм\*см, то основным механизмом можно с уверенностью считать асимметричное рассеяние и, соответственно, имеет место  $R_S \sim \rho_{xx}$ . Если сопротивление материала оказывается в интервале 1 мкОм\*см  $< \rho_{xx} < 100$  мкОм\*см, тогда имеют место несколько вышеописанных механизмов.

### 1.1.3 Эффект Холла в высокорезистивных гетерогенных системах. Эффект Холла в сплавах Гейслера

При всей трудности определения конкретного механизма экспериментальные результаты, полученные при исследовании гомогенных низкорезистивных систем, более или менее согласуются с теоретическими. Сложнее ситуация обстоит с высокорезистивными и гетерогенными системами.

Если сопротивление  $\rho_{xx}$  оказывается выше 100 мкОм\*см, тогда, согласно работе [12], имеет место корреляция  $R_S \sim \rho_{xx}^m$  с параметром m = 0.2 ÷ 0.4 (без теоретического обоснования), что не соотносится ни с одним из предложенных выше механизмов. В качестве примера приводятся результаты измерения эффекта Холла в  $Fe_3O_4$  [22], где получается вышеописанная корреляция при сопоставлении температурных зависимостей. Такая же система была позже исследована [23] уже в виде тонких пленок, в которых было получено значение параметра m = 0.4. В работе [24] был исследован как похожий состав  $Fe_3O_4$ , так и  $Fe_{3-x}Zn_xO_4$  при различных х, где был получен параметр m = 0.31.

В сплавах Гейслера  $Ni_{50}Mn_{17}Fe_8Ga_{25}$  [25], имеющих мартенситный переход, результаты оказались более необычными. Для мартенситной высокотемпературной аустенитной фазы корреляция оказалась  $\rho_{xy} \sim \rho^{2.1}$ , что авторы работы связали с боковым прыжком, но для низкотемпературной мартенситной фазы корреляция выглядела как  $\rho_{xy} \sim \rho^{4.2}$ . Авторы предположили, что данная зависимость связана с механизмом бокового смещения, но не на отдельных примесях, а на кластерах, однако какого-либо теоретического обоснования этому не последовало. Тем не менее стоит сказать, что в данной работе авторами как не учитывалось наличие НЭХ, так и не выделялись коэффициенты НЭХ и АЭХ и не изучался эффект вблизи мартенситного перехода.

В другой работе [26] в сплаве  $Ni_{50}Mn_{34.8}In_{15.2}$  было показано, что корреляция сопротивления и сопротивления Холла, в общем, не корректна для всего диапазона

измерений. На рис. 4 представлены температурные зависимости сопротивления Холла в полях 5 кЭ и 15 кЭ, а на вкладке – температурная зависимость электросопротивления. Однако такую зависимость удалось качественно объяснить, учитывая наличие смеси двух фаз или, иначе говоря, с точки зрения эффективной среды.



**Рис. 4**. Температурные зависимости сопротивления Холла и электросопротивления (на вставке) сплава  $Ni_{50}Mn_{34.8}In_{15.2}$  [26]

Таким образом, можно сказать, что существует лишь ограниченное число работ, посвященное изучению эффекта Холла в сплавах Гейслера, как и посвященных изучению MC. Как правило, в работах изучение магнитотранспортных свойств проводилось для установления температур фазовых переходов или обсуждения явлений, связанных с кинетикой фазовых переходов, а какого-либо обсуждения проблем, связанных с поведением носителей в сплавах Гейслера, практически не было. Также в большинстве работ не предпринималось попыток выделения коэффициентов НЭХ и АЭХ, не выделялся АЭХ непосредственно вблизи мартенситного перехода. Полученные же данные, в основном, имеют противоречивый характер.

Поэтому в сплавах Гейслера эффект Холла, как и МС требуют более систематического исследования, в том числе в новых материалах.

#### 1.1.4 Эффект Холла в гранулированных нанокомпозитах

Второй тип исследуемых в настоящей работе высокорезистивных систем – наногранулированные композиты, известные благодаря открытому в них гигантскому эффекту Холла (далее ГЭХ) в 1995 году в системе  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  [27]. При измерении

эффекта Холла в образцах с концентрациями х, приближающимися к  $x_c = 53$ , были получены величины сопротивления Холла 2 \* 10<sup>-4</sup> мкОм \* см, что на 4 порядка больше, чем в чистом никеле. Такую величину эффекта не могла описать ни теория перколяции, ни теория эффективной средней среды [27], [28], [29], которые предполагали увеличение величины эффекта не более чем в 20-30 раз. Также для диапазона концентраций х от 50 до 100 была построена зависимость  $\rho_{xy} \sim \rho^m$ , для которой в случае сопоставления температурных зависимостей было получено m = 2.0, что авторы резонно соотнесли с механизмом бокового смещения. В случае же сопоставления концентрационных зависимостей была получена зависимость с параметром m = 0.7, не согласующаяся ни с одним из основных механизмов.

В работе [30] в такой же системе  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  были произведены исследования, в основном при низких температурах, и также обнаружен эффект ГЭХ. Причем, как подмечали авторы, при понижении концентрации х от 100 к так называемому порогу перколяции x<sub>c</sub> = 60 и далее величина эффекта Холла испытывала быстрый рост вблизи x<sub>c</sub> и после выходила на насыщение. При изменении температуры 70 – 100 К была также построена корреляция  $\rho_{xy} \sim \rho^m$ , для которой оказалось m = 1.8, что соотнесли с эффектом бокового смещения с поправкой на пониженное при низких температурах рассеяние на фононах и магнонах, связанное с изменением магнитных свойств суперпарамагнетика. В данной работе авторы предположили, что в таком большом росте величины эффекта виноваты как и эффект перколяции, так и эффект слабой локализации, особенно играющий роль при низких температурах. Также была попытка построить корреляции  $\rho_{xx} \sim \left[\frac{x-x_c}{x_c}\right]^{-t}$  и  $\rho_{xy} \sim \left[\frac{x-x_c}{x_c}\right]^{-g}$ , из которых в результате были определены t = 2.7 ± 0.2 и  $g_{0} = 1.8 \pm 0.2$ ,  $g_{s} = 2.0 \pm 0.3$  (где t – критический индекс для электросопротивления,  $g_{0}$  и g<sub>s</sub> – критические индексы для нормального и аномального эффекта Холла соответственно). Для сравнения, параметры для модели перколяции равны 2 и 0.4÷0.5 для t и g<sub>0</sub>, g<sub>s</sub>. Такое различие авторы также связали со слабой локализацией.

Для большего понимания влияния микроструктуры данных материалов на происходящие эффекты в работе [31] на образцах  $(Ni_{85}Fe_{15})_x(SiO_2)_{100-x}$  было исследовано влияние отжига образцов после приготовления на величину эффекта. Было получено, что для образцов с концентрациями x = 58, 60, 63 после отжига при вплоть до 300 градусах по Цельсию как электросопротивление, так и сопротивление Холла слабо возрастают, однако после отжига при больших температурах величина эффекта начинает заметно падать. Например, величина эффекта после отжига при 520 градусах по Цельсию как электросопе отжига при 520 градусах по Цельсию оказалась меньше изначальной на два порядка и, более того, вполне соотносилась с

результатами теории перколяции. Такое поведение авторы работы связали с тем, что ниже 300 градусов по Цельсию происходит увеличение электросопротивления (и, соответственно, сопротивления Холла) за счет того, что частицы металла размером меньше 1 нм, шунтирующие диэлектрическую прослойку между большими гранулами, концентрируются в отдельные гранулы, и, соответственно, шунтирование пропадает. Выше 300 градусов по Цельсию, по мнению авторов, отжиг начал приводить к тому, что увеличивающиеся в размерах гранулы стали соприкасаться, образовывая непрерывную металлическую сеть. В качестве примера было приведено, что после отжига при 520 градусах по Цельсию средний размер гранул увеличился с 3 до 6 нм.

В работе [32] были исследованы образцы аналогичного состава  $(Ni_{85}Fe_{15})_x(SiO_2)_{100-x}$  с диапазоном концентраций от 50 до 100. Исходя из результатов измерений, были построены корреляции  $\rho_{xx} \sim \left[\frac{x-x_c}{x_c}\right]^{-t}$  и  $\rho_{xy} \sim \left[\frac{x-x_c}{x_c}\right]^{-g}$ , из которых в результате были определены t =  $4.5 \pm 0.2$  и  $g_0 = 3.0 \pm 0.3$ ,  $g_s = 3.5 \pm 0.2$ . Небольшая разница между  $g_0$  и  $g_s$ , как полагают авторы данной работы, имеет место из-за того, что вклад в АЭХ дают только d-электроны. Далее ставится вопрос: приводит ли к росту величины НЭХ и АЭХ один и тот же механизм или задействованы различные механизмы? Поскольку значения параметров  $g_0$  и  $g_s$  оказались близки, выдвигается предположение, что механизм одинаков и поэтому не связан с аномальными магнитными полями. В качестве механизма выдвигается уменьшение эффективной плотности носителей заряда из-за слабой локализации, которое также приводит к уменьшению экранирования электрон-электронного взаимодействия. Тем не менее, исходя из расчетов, для получения такой разницы между параметрами t и g в модели перколяции и в исследуемых образцах плотность носителей заряда должна изменяться достаточно существенно, и остается не совсем ясно, что может привести к такому изменению.

В качестве одной из причин, приводящей к уменьшению плотности носителей заряда, был предложен квантовый размерный эффект [33]. Вследствие данного эффекта в спектре энергий электронов возникает щель  $\delta$ , которую могут преодолеть лишь электроны с энергией kT >  $\delta$ . Такое предположение вело как к уменьшению плотности носителей заряда, так и к отрицательному температурному коэффициенту сопротивления, наблюдающемуся в композитах при большинстве концентраций. Более раннее предположение о влиянии слабой локализации, как на характер температурной зависимости сопротивления, так и на уменьшение плотности зарядов, авторы работы опровергли. В качестве обоснования своего решения было замечено, что хотя явление слабой локализации должно (которое, в том числе, ведет к отрицательному

температурному коэффициенту сопротивления) играть значительную роль лишь при низких температурах, однако измеренная в работе температурная зависимость сопротивления  $(Ni_{85}Fe_{15})_x(SiO_2)_{100-x}$  при комнатных температурах T = 300 K свой вид не изменила. Отсюда можно сделать вывод, что причиной такой температурной зависимости является не слабая локализация, но какой-то другой механизм, а слабая локализация не реализуется в данных материалах или не играет заметной роли.

Исследования также проводились в неупорядоченных сплавах металл-металл, например в  $Co_{20}Ag_{80}$  и  $(Co_{70}Fe_{30})_xAg_{100-x}$  [34] и [35] в которых, однако, гигантских значений эффекта Холла обнаружено не было. В работе [34] авторы сравнили полученные результаты и в первом случае при температуре 4.2 К получили корреляцию  $\rho_{xy} \sim \rho^{3.8}$ , а во втором случае получили, что квадратичная зависимость сопротивления Холла от электросопротивления, присущая основным механизмам АЭХ, не наблюдается ни при изменении по температуре, ни при изменении по концентрации. Авторами данной работы было предложено и показано, что рассеяние электронов проводимости на поверхности раздела гранул и матрицы оказывает существенное влияние на величину АЭХ и определяет его знак. В таком случае к росту величины эффекта приводит классический размерный эффект, величина которого зависит от отношения размеров гранул к длине свободного пробега и проводимости матрицы. Для данного механизма авторами работы была рассчитана корреляция  $\rho_{xv} \sim \rho^m$  при концентрации x = 20 состава и размерах гранул от 2 до 6 нм. Полученный параметр m = 3.8, что совпадает с экспериментальными результатами [35]. Поскольку эффект зависит от рассеяния на поверхности гранул, то становится понятно, почему его величина уменьшается при отжиге при больших температурах – поскольку пропадают гранулы меньшего размера и начинают преобладать гранулы большего размера, общая поверхность, на которой происходит рассеяние, уменьшается, и соответственно, уменьшается величина эффекта. Зависимость величины эффекта от размера гранул была рассчитана авторами в рамках данной модели, учитывая классический размерный эффект и более сложное рассеяние на двух и трех гранулах, и результаты подтвердили высказанное предположение. Также было рассчитано и показано, что величина эффекта увеличивается, особенно для гранул меньшего размера, при уменьшении длины свободного пробега носителей в матрице. Стоит заметить, что из предположений следовало, что в основном гигантский эффект Холла связан именно с увеличением аномального вклада, в отличие от предыдущих предположений. В заключение, авторами было замечено, что все расчеты были произведены для механизма асимметричного рассеяния, в модели которого, в отличие от механизма бокового смещения, можно получить такие результаты.

Гипотеза о роли рассеяния носителей на поверхности раздела в качестве основного механизма ГЭХ получила развитие в работе [36], где исследовались композиты состава  $(Ni_{85}Fe_{15})_x(SiO_2)_{100-x}$ . Исходя из работ [37], [38], в которых было исследовано влияние классического размерного эффекта на механизм асимметричного рассеяния в тонкой гомогенной пленке, авторы рассчитали аналогичное влияние в случае гетерогенной структуры и получили дополнительный член  $R_s^{bs}$  в выражении  $R_s$ , который и приводит к гигантским величинам эффекта в неупорядоченных средах. При использовании нового выражения для  $R_s$ , были произведены расчеты при разных значениях дополнительного члена, которые совпали с экспериментальными значениями. Также авторами предполагалась возможность того, что ниже порога перколяции туннелирование носителей между гранулами может вносить заметный вклад в величину эффекта, но подробных исследований в данной работе произведено не было.

Исследование АЭХ в режиме туннельной проводимости было осуществлено позже в работе [39], в композитах состава  $Fe_x(SiO_2)_{100-x}$ . В ней механизмом АЭХ предполагалась интерференция амплитуд туннельных переходов на трех гранулах. Данная идея развивала предположение о значимости вклада рассеяния носителей заряда на поверхности раздела между гранулами и гранулами с диэлектриком, однако, уже в случае туннельного типа проводимости. Из вышеприведённых соображений, предположив, что основной вклад в АЭХ дают лишь гранулы оптимального размера, авторы рассчитали корреляцию  $\rho_{xy} \sim \rho^m$ , для которой получили m = 0.35 в случае проводимости с переменной длиной прыжка и m = 0.5 в случае постоянной энергии активации [40], [41]. Для сравнения авторами работы были представлены полученные экспериментально корреляции, которые имели m = 0.51±0.7 в случае изменения по концентрациям и m = 0.6 в случае изменения по температуре. Также, можно привести значение m = 0.7, полученное в работе [27] в  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  при изменении по концентрациям. Предложенный механизм был исследован и подтвержден при низких концентрациях в работе [42].

Примечательно, что ГЭХ наблюдался даже в системах с неферромагнитной металлической компонентой. В работе [43] была исследована система  $Cu_x(SiO_2)_{100-x}$ , для которой было получено увеличение коэффициента НЭХ примерно на 3 порядка. Данная работа является резонным подтверждением существования некоего немагнитного механизма роста величины эффекта, что не могли объяснить теории, связанные с рассеянием на поверхностях раздела. Авторы работы связывали данное увеличение с квантовым порогом перколяции, при ожидаемых концентрациях которого (выше концентраций классического порога перколяции) наблюдался максимальный эффект.

Во всех ранних работах в композитах металл-диэлектрик изучался эффект при концентрациях выше или рядом с порогом перколяции, в то время как касательно происходящих эффектов ниже порога перколяции (в диэлектрической фазе) мнения были еще более противоречивые. В работе [30] исследовались концентрации не ниже x = 53, и были представлены результаты в которых величина эффекта Холла испытывала насыщение. В работе [29] исследовались концентрации x > 50, величина эффекта испытывала максимум при  $x \sim 55$ . В работе [44] исследовался  $Fe_x(SiO_2)_{100-x}$ , в том числе и ниже порога перколяции. Было установлено, что, хотя, казалось, вблизи порога перколяции величина эффекта Холла выходит на насыщение, с дальнейшим понижением концентрации величина эффекта продолжает слегка расти. В работе же [45] наблюдалось резкое снижение величины эффекта при  $x < x_c$ . В работе [42] величина эффекта при понижении концентрации сначала росла до насыщения, потом испытывала локальный минимум и поднималась на новое плато.

Еще один не до конца ясный момент, какие концентрации являются «критическими» - когда происходит максимальный рост величины эффекта, и, собственно, можно полагать что происходит ГЭХ. Например, в работах [46], [47], [48] максимальный эффект наблюдается выше порога перколяции, при концентрациях близких к так называемому квантовому порогу перколяции. Исследованный подробно в [48], квантовый порог перколяции развивал идею квантового размерного эффекта. В тоже время в работах [49] и [42] максимальный эффект наблюдается ниже порога перколяции, когда преобладает другой тип проводимости.

В работе [46] была сделана попытка разделить аномальный и нормальный вклады в эффект Холла, что приближало разрешение вопроса о механизме эффекта. Было показано, что для  $Co_x(SiO_2)_{100-x}$  при подходе к порогу перколяции при температуре 5К нормальная составляющая эффекта Холла  $\rho_{xy0}$  увеличивается в 60 раз, в то время как аномальная составляющая  $\rho_{xys}$  увеличивается в 1500 раз. Аналогично, для  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  5К нормальная составляющая эффекта Холла  $\rho_{xy0}$  увеличивается в 120 раз, в то время как аномальная составляющая  $\rho_{xys}$  увеличивается в 750 раз. Такая разница в росте вкладов предполагает, что в росте величины НЭХ и АЭХ задействованы разные механизмы.

Подводя итог, можно сказать, что для гранулированных нанокомпозитов до сих пор остается открытым вопрос, какой механизм эффекта Холла реализуется в данных материалах и приводит к таким большим величинам вблизи порога перколяции. Выяснению механизмов, приводящих к ГЭХ, могут способствовать исследования эффекта в новых материалах, как металлической компоненты, так и диэлектрической. Также, в

большинстве работ, посвященных эффекту Холла, исследуется либо сопротивление Холла, либо нормальный и аномальный вклады в эффект Холла. Оба варианта некорректны, так как при данных подходах либо вообще не разделяются вклады в эффект, которые, возможно, имеют разную природу, либо не учитывается вклад изменения намагниченности в сопротивление холла (см. выражение для  $\rho_{xy}$ ) и т.д. Более корректным представляется выделять коэффициенты Холла, которые уже напрямую связаны с механизмами эффекта.

Поэтому исследования эффекта Холла и МС в гранулированных нанокомпозитах, являются актуальными.

#### §1.2 Нанокомпозитные материалы металл-диэлектрик

#### 1.2.1 Основные представления

В последнее время в области исследования новых материалов особое внимание уделяется изучению многокомпонентных гетерогенных систем, таких как нанокомпозитные материалы металл-диэлектрик. Применение таких систем в радиопоглощающих покрытиях стимулировало изучение их магнитных, транспортных, оптических и механических свойств.

Подобные структуры начали широко исследоваться, начиная с середины прошлого века, когда в 1957 году была построена теория протекания (или перколяции) [50]. В 1975 году для модели композитного материала неферромагнитный металл-диэлектрик впервые рассчитан и подтвержден экспериментально рост эффекта Холла в случае перколяции, составивший 2-3 раза [51].

Интерес к данной тематике значительно возрос после открытия гигантского эффекта Холла в 1995 году. Измеренное в нанокомпозитах  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  сопротивление Холла претерпевало увеличение на 4 порядка по сравнению с чистым металлом при приближении концентрации х к так называемому порогу перколяции [27]. Такой рост не удалось объяснить ни популярной тогда теорией перколяции, ни теорией эффективной среды, которые предполагали увеличение в 10-30 раз для теории перколяции и в 6-7 раз для теории эффективной среды, соответственно [27], [46].

Впоследствии были исследованы нанокомпозиты с другими металлическими компонентами, например: Co<sub>x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>1-x</sub>, Fe<sub>x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>1-x</sub> (рис. 7), (Fe<sub>y</sub>Mn<sub>1-y</sub>)<sub>x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>1-x</sub> (работы [27], [49], [39], [42], [52] соответственно). Также были исследованы неупорядоченные системы ферромагнитный металл - неферромагнитный металл, неферромагнитный металл – диэлектрик.

Данные материалы представляют значительный практический интерес: в них наблюдаются такие эффекты, как гигантский эффект Холла, гигантское магнитосопротивление, гигантский магнитоимпеданс, магниторефрактивный эффект. Материалы перспективны для применения в переменных электромагнитных полях (ввиду своего высокого сопротивления), как датчики магнитного поля и т.д. Однако физическая природа многих происходящих явлений в них еще не установлена до конца и требует теоретического описания и, соответственно, экспериментального изучения.

# 1.2.2 Структурные свойства гранулированных нанокомпозитных материалов металл-диэлектрик

Как уже было сказано, исследуемые материалы представляют собой смесь двух фаз с четко выраженной границей раздела между ними (Рис. 5) и обладают комплексом свойств, отличающихся от свойств каждой из отдельно взятых компонент. В случае малой концентрации металла структура представляет собой или изолированные друг от друга металлические области в диэлектрической матрице, или, в случае больших концентраций металла, диэлектрические островки в проводящей среде.



**Рис. 5**. Микрофотография наногранулированного композита Co<sub>52</sub>Al<sub>20</sub>O<sub>28</sub> [53] Черным цветом отмечены металлические (Co) гранулы, белым – диэлектрическая матрица (Al-O).

Структура диэлектрической компоненты аморфная, в то время как структура металлических гранул разных составов встречается как кристаллическая, так и аморфная [53]. Форма гранул, как правило, сферическая, в то время как размер гранул большей частью зависят от методов получения. Например, производимый после приготовления материала отжиг способствует большему скоплению металлических частиц в отдельные

гранулы, что приводит к увеличению их размера и уменьшению количества гранул [53], и от относительной концентрации компонент. В материале  $(Co_{86}Nb_{12}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}$  при изменении х с 34% до 50% размер гранул увеличивается с 2 нм до 7 нм [53]. Средний размер гранул, как правило, составляет несколько нанометров.

Исследуя свойства материала при разных концентрациях, можно наблюдать такое явление, как порог перколяции. При концентрациях выше порога перколяции, когда образуется так называемый бесконечный проводящий (или перколяционный) кластер, проводимость материала будет расти, и его транспортные свойства будут ближе к металлическим. Как правило, максимумы эффектов Холла, МС наблюдаются именно вблизи порога перколяции (Рис. 6.).



**Рис. 6**. Зависимость сопротивления НЭХ, сопротивления АЭХ и электросопротивления образца (NiFe)<sub>X</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>100-X</sub> от концентрации [32]

Важно заметить, что величина порога перколяции сильно зависит от множества факторов: от размеров металлических гранул, от их формы и иногда от материала гранул и диэлектрика. Порог перколяции может сместиться в зависимости от условий приготовления образца (например, был ли произведен отжиг и при какой температуре).

Также разные значения получаются при использовании различных методов определения порога перколяции [54].

#### 2.2.3 Магнитные свойства

Нанокомпозиты с металлической компонентой Со-Fe-В проявляют себя либо как ферромагнетики, либо как суперпарамагнетики, в зависимости от концентраций х и температуры. При низких концентрациях х образец, представляющий собой отдельные металлические гранулы в диэлектрической матрице, является суперпарамагнетиком. С повышением концентрации х усиливается обменное взаимодействие между гранулами,

приводящее к дальнему порядку между магнитными моментами гранул и, как следствие, к ферромагнитному поведению материала (Рис. 7).



**Рис.** 7. Петли гистерезиса для (CoFeB)<sub>x</sub>(SiO)<sub>100-x</sub> при разных значениях концентрации х при комнатной температуре [53]

#### §1.3 Сплавы Гейслера

#### 1.3.1 Основные представления о сплавах Гейслера

Свое название эта группа сплавов получила в честь немецкого металлурга Фридриха Гейслера, который в 1898 году обнаружил ферромагнетизм в системе Cu<sub>2</sub>MnAl [55]. Данный сплав оказался ферромагнетиком с достаточно высокой температурой Кюри (более 600К), хотя ни одна из его компонент не являлась ферромагнетиком. В дальнейшем ферромагнетизм был обнаружен у большого количества сплавов, состоящих из неферромагнитных материалов.

В 80-х годах прошлого века в некоторых сплавах было обнаружено полуметаллическое поведение, которое приводит к высокой спиновой поляризации [56], а позже в сплавах Ni<sub>2</sub>MnGa был открыт эффект растяжения образца до 10% во время мартенситного перехода в магнитном поле [57]. Такой же мартенситный переход был обнаружен в сплавах Ni-Mn-Z (Z = In, Sb, Sn), однако, только при отклонении химического состава от стехиометрического. Из-за наличия мартенситного перехода, а также сильной взаимной зависимости структурных и магнитных свойств, в сплавах Гейслера наблюдаются такие эффекты, как: деформации в магнитном поле, магнитокалорический эффект, гигантское магнитосопротивление, эффекты обменного смещения и т.п. [58]. Наглядно это представлено на рис. 8.



Рис. 8. Многообразие явлений в сплавах Гейслера [8]

На сегодняшний день сплавами Гейслера можно считать тройные интерметаллические соединения со стехиометрическим соотношением XYZ (полусплавы Гейслера) и X2YZ (полные сплавы Гейслера). Здесь X и Y – переходные металлы, а Z – элементы III-V групп. Кроме того, Y может быть редкоземельным элементом или цёлочноземельным металлом [59], а X может быть заменен на элемент группы Y.

В данной работе основное внимание уделяется сплавам состава "Full Heuslers", имеющим мартенситные превращения. При всем многообразии сплавов и их свойств, в данной работе будет рассмотрена их небольшая часть, наиболее связанная с магнитотранспортными свойствами материала.

#### 1.3.2 Структурные свойства и мартенситные фазовые переходы

Ферромагнитный тройной сплав Гейслера Fe-Mn-Ga, исследуемый в данной работе, относится к сплавам состава  $X_2YZ$  (full-heusler). Возможно присутствие двух фаз: аустенитной и мартенситной.



**Рис. 9**. Кристаллическая структура сплавов Fe-Mn-Ga в a) аустенитной и б) мартенситной фазах. Черные, синие и красные кружки обозначают Fe, Mn, и Ga соответственно. Жирной черной линией обозначена ячейка тетрагональной решетки

Структура сплавов Гейслера в аустенитной фазе обозначается как  $L2_1$  (рис. 9) и представляет собой четыре взаимопроникающие гранецентрированные подрешетки (одна подрешетка состоит из атомов марганца, другая – из атомов галлия, а две оставшихся – из атомов железа) [60]. В мартенситном состоянии структура становится тетрагональной, которая обозначается как  $L1_0$  (рис. 9).

Переход из одной фазы в другую классифицируется как фазовый переход 1 рода и называется мартенситным переходом (или мартенситным превращением). Особенности таких переходов хорошо изучены и подробно описаны во множестве работ, поэтому в данной работе приведены лишь основные черты:

- 1. Бездиффузионность превращений концентрация составляющих элементов в исходной аустенитной и мартенситной фазах одинаковы.
- 2. Температурный гистерезис поскольку мартенситные превращения являются фазовыми переходами 1-го рода, превращение происходит путем зарождения и последующего роста областей мартенситной фазы. Это приводит к тому, что до завершения мартенситного превращения среда представляет собой смесь мартенситной и аустенитной фаз, и поэтому необходимо характеризовать переход температурами начала и конца превращения (рис. 10)
- 3. В кристаллической решетке мартенсита всегда имеются структурные дефекты: двойники, дефекты упаковки. В дополнение к сдвиговой деформации добавляется дополнительная деформация, связанная со скольжением и двойникованием (деформация с инвариантной решеткой), которая частично или полностью компенсирует изменение формы при мартенситном превращении.
- 4. Обратимость характера превращения.
- 5. Зависимость температур перехода от внешних условий: приложенного магнитного поля, механических напряжений.
- 6. Зависимость температур перехода от состава или допирования элементом.



**Рис. 10**. Зависимость относительного количества мартенсита  $\Phi$  от температуры

#### 1.3.3 Магнитные свойства сплавов Гейслера

Поскольку мартенситная и аустенитная фазы имеют различные решетки с разными магнитными свойствами, макроскопически магнитные свойства сплавов Геслера сильно связанны со структурными, что позволяет судить о мартенситном переходе исходя из температурных зависимостей намагниченности. На рис. 11 представлена температурная зависимость намагниченности близкого к исследуемому составу в данной работе состава  $Fe_{43}Mn_{28}Ga_{29}$  [61], где видны температуры начала конца перехода. Для сплава характерна достаточно большая ширина гистерезиса, которая составляет порядка 80К.



**Рис. 11**. Температурные зависимости намагниченности сплава Fe<sub>43</sub>Mn<sub>28</sub>Ga<sub>29</sub> [61] в полях 500 Э и 70 кЭ

Имеется ряд особенностей температурной намагниченности М(Т), которые определяют поведение сплава в магнитном поле. Во-первых, из рисунка видно, что мартенситная фаза обладает большей намагниченностью, чем аустенитная, что нетипично для других FSMA, например Co–Ni–Ga [62], Ni2FeGa [63], Mn2NiGa [64] и Ni2MnAl [65].

Второй особенностью является смещение температур перехода на 20К при увеличении поля с 500 Э до 70 кЭ. Увеличение температуры мартенситного перехода можно объяснить, если учесть, что намагниченность мартенситной фазы больше, чем аустенитной, что видно из рис. 11. Из-за этого вблизи структурного перехода мартенситная фаза становится более энергетически выгодной в магнитном поле, нежели аустенитная, что смещает температуры, при которых происходит переход, в сторону более высоких.

В-третьих, стоит сказать, что магнитное поле может не только смещать температуру фазового перехода, но и провоцировать фазовый переход самостоятельно. Резкий рост (рис. 12) намагниченности после достижения насыщения связан с индуцированием магнитным полем структурного перехода – сплав переходит в аустенитную фазу с большим магнитным моментом.



**Рис. 12**. Полевые зависимости намагниченности сплава Fe<sub>50</sub>Mn<sub>22.5</sub>Ga<sub>27.5</sub>, измеренные при различных температурах [66].

Как видно, магнитное поле имеет сильное влияние на структурные свойства сплавов Гейслера. Это влияние и приводит к появлению новых свойств, которые делают сплавы перспективными для исследования.

#### 1.3.4 Магнитотранспортные свойства сплавов Гейслера

В работе [66] было исследовано электросопротивление состава *Fe*<sub>49</sub>*Mn*<sub>23.5</sub>*Ga*<sub>27.5</sub> (рис. 13).



Рис. 13. Температурные зависимости электросопротивления и восприимчивости сплава

 $Fe_{49}Mn_{23.5}Ga_{27.5}$  [66]

Как видно из графика, сопротивление сплава варьируется от 80-160 мкОм\*см в мартенситной фазе до ~220-230 мкОм\*см в аустенитной фазе.

Примечательно, что аустенитная фаза (которая считается более симметричной), имеет большее сопротивление, чем мартенситная, что противоположно результатам в ранее изученных сплавов Ni-Mn-Ga и Ni-Mn-In [64], [56]. Также, нетипично, что температурный ход электросопротивления аустенитной фазы имеет полуметаллический характер. Для объяснения такого поведения авторы работы [63] произвели рассчеты, которые показали, что данному сплаву, как и сплаву Fe<sub>2</sub>MnGa [67], присуща энергетическая щель для состояний на уровне Ферми, которую могут преодолеть лишь электроны с достаточной энергией kT, что ведет к отрицательному температурному коэффициенту для аустенитной фазы. Для мартенситной фазы, авторы высказывают, что электронная плотность состояний на уровне Ферми увеличинается примерно на порядок из-за сильного ослабления антисвязывания (antibonding). Как результат, сопротивление заметно уменьшается и имеет положительный температурный коэффициент.

Показанная на рис. 13 зависимость восприимчивости от температуры, как видно, имеет два гистерезиса, хотя зависимости намагниченности в сильном поле (рис. 11), и сопротивления (рис. 13) имеют только один гистерезис, связанные с мартенситным превращением. В температурной зависимости восприимчивости с мартенситным превращением связан правый на рисунке гистерезис, левый же авторы работы связывают с температурой кюри аустенитной фазы.

Для магнитосопротивления температурная зависимость обычно имеет большой пик в области структурного перехода, и небольшие пики в области магнитных переходов, если таковые присутствуют. Большие значения магнитосопротивления в области структурного перехода достигают 40-70% в магнитных полях 5-7 Тл [68], [69], [70], [71]. Так как величина МС обусловлена мартенситным переходом, индуцированным магнитным полем, то важную роль тут играет разность сопротивлений мартенситной и аустенитной фаз. Исследований сопротивления Холла в системах Fe-Mn-Ga произведено не было.

#### Глава 2. Методика измерений и исследуемые образцы

#### 2.1 Изучение магнитных свойств

Исследование магнитных свойств образцов было произведено с помощью вибрационного магнитометра фирмы Lake Shore (рис. 14). Данная установка обеспечивает

высокую стабилизацию температур и магнитных полей, и позволяет производить измерения с хорошей точностью. Параметры установки приведены ниже:

- 1. Максимальное поле, достижимое на установке равно 16 кЭ.
- 2. Точность измерения поля 0,5 Э.
- 3. Диапазон достижимых температур 7-1200 К (в данном эксперименте использовалась конфигурация, обеспечивающая диапазон 80-400 К).
- 4. Стабильность температуры составляет 0,1 К.
- 5. Точность измерения магнитного момента составляет  $10^{-5}\Gamma c * cm^3$ .



Puc.14. Фотография вибрационного магнитометра VSM LakeShore

Образец был закреплен на кварцевом штоке при помощи ФУМ-ленты или клея БФ-6, после чего располагался между полюсными наконечниками, равноудаленно от каждого из них. Измерения производились в криостате, в котором достижимы температуры 80К -400К при использовании жидкого азота в качестве хладагента. Для проверки влияния криостата, ФУМ-ленты или клея на получаемые результаты была измерена петля гистерезиса без образца. Экспериментальные результаты показали, что наличие криостата, ФУМ-ленты или клея БФ-6 не вносит изменений в полученные результаты в пределах погрешности. В случае сплавов Гейслера, необходимо было знать массу образца, чтобы из полученных результатов рассчитать его удельную намагниченность. Для этого образцы взвешивались на весах, точность измерений которых порядка 1 мг, что при массе образцов порядка 100 мг составляет 1%.

В случае наногранулированных композитов, рассчитывался объем образца из его линейных размеров. Толщина пленки измерялась интерференционным микроскопом, остальные величины с использованием компаратора.

#### 2.2 Изучение магнитотранспортных свойств

Исследования магнитотранспортных свойств проводились на экспериментальном комплексе, обеспечивающем стабилизацию температуры на уровне 1К, высокую точность поля и стабилизацию тока через образец. Внешний вид установки приведен на рис. 15.



Система стабилизации температуры была изготовлена в фирме RTI г. Черноголовки.

**Рис. 15.** Фотография экспериментального комплекса для измерения магнитотранспортных свойств материалов.

#### Параметры установки:

- Максимальное поле, достижимое на установке, равно 14 кЭ.
- Дискретность изменения поля 10 Э.
- Точность измерения поля 0,5 Э.

- Диапазон измеряемых сопротивлений от  $10^{-6}$  Ом до  $10^{9}$  Ом.
- Погрешность измерения сопротивления не превышает 0,01%.
- Диапазон рабочих температур от 7,2 К до 400 К.
- Точность стабилизации температуры:
  - а) 0,6 К в диапазоне 7-14 К.
  - b) 0,3 К в диапазоне 14-20 К.
  - с) 0,1 К в диапазоне 20-400 К.

Измерения магнитосопротивления и ЭДС Холла производились с использованием 6-ти контактной методики.

В случае сплавов Гейслера использовалась конфигурация, схему которой и, в качестве примера, фотографию калибровочного образца из электролитического Ni, можно увидеть на рис. 16.



**Рис.16**. Схема нанесения контактов на образец и фотография образца Ni, используемого для калибровки

На схеме обозначены следующие контакты: 1 и 5 - токовые контакты, 2 и 4 – контакты для измерения сопротивления и 3 и 6 – для измерения сопротивления Холла. В данной конфигурации важно расположить контакты для измерения сопротивления Холла симметрично посередине между токовыми контактами, чтобы в нулевом поле при протекающем токе напряжение  $U_{36}$  стремилось к нулю. Контакты для измерения сопротивления необходимо располагать не ближе к токовым, чем на <sup>1</sup>/<sub>4</sub> длины образца. Такая схема обеспечивает гальваническую развязку измерительных приборов и проведение измерений при максимально однородном распределении плотности тока.

В случае наногранулированных композитных материалов, использовалась конфигурация, схема которой приведена на рис. 17.

Для измерения по второй схеме используется схожий принцип: сопротивление образца измеряется между контактами 2 и 4, в то время как сопротивление Холла

измеряется между контактами 2 и 3. В таком случае контакт 6 остается незадействованным и используется только в случае, если один из используемых контактов нарушает свою целостность.



**Рис. 17.** Схема нанесения контактов на образец, используемая для измерений нанокомпозитныз материалов

Схема измерений была следующей: вначале образец подвергался 3-х кратному циклу нагрева-охлаждения от 80 К до 350 К, после чего образец нагрели до 350 К и затем охладили до температуры 80 К в нулевом магнитном поле. Далее снимались зависимости поперечного магнитосопротивления и холловского сопротивления от приложенного магнитного поля при нагреве образца последовательно с переменным шагом по температуре. Важно отметить, что полевые зависимости снимались за один цикл, т.к. поведение МС сильно зависят от предыстории образца.

При измерении напряжения между холловскими контактами при различных комбинациях направления магнитного поля H и тока I через образец необходимо исключить добавочные напряжения, связанные с эффектами Эттинсгаузена, Риги-Ледюка, Нернста, магнитосопротивления и термоэдс путем усреднения значения величины, полученной при коммутации направления тока и магнитного поля:

$$U_h = \frac{U_h(+H;+I) - U_h(+H;-I) - U_h(-H;+I) + U_h(-H;-I)}{4}$$

где знаки "+" и "-" обозначают направления тока и магнитного поля.

Удельное сопротивление Холла рассчитывается по формуле:

$$\rho_h = \frac{U_{xy} \cdot d}{I},$$

где d – толщина образца.

#### 2.3 Определение коэффициентов Холла

Определение коэффициентов Холла  $R_0$  и  $R_s$ , входящих в феноменологическую формулу

$$\rho_h = R_0 B_Z + 4\pi R_S M_Z,$$

представляет собой нетривиальную задачу.

Самый простой способ заключается в определении наклона холловской кривой в слабых и сильных магнитных полях. Такой метод основывается на нескольких предположениях.

Во-первых, при малых полях сопротивление Холла пропорционально намагниченности М, при этом нормальная составляющая  $R_0B_Z$  значительно меньше аномальной  $4\pi R_S M_Z$ . Второе предположение заключается в том, что при высоких полях сопротивление Холла  $\rho_H$  пропорционально приложенному магнитному полю, т.е. прирост сопротивления обусловлен изменением нормальной составляющей, в то время как аномальная составляющая остается постоянной. Графическое пояснение данного метода представлено на рис. 18.



Рис.18. Схема графического метода определения коэффициентов Холла [6]

Данный способ представляется некорректным по множеству причин, и главной среди них является то, что не учитывается влияние приращения намагниченности в области парапроцесса на приращение аномальной составляющей сопротивления Холла. Уменьшить влияние парапроцесса для получения корректных значений  $R_0$  можно, однако для этого требуются сильные магнитные поля, большие, чем поле насыщения.

Поэтому, если наблюдается отклонение от линейности в зависимости  $\rho_H(B)$  в полях выше магнитного насыщения, то причиной этого, вероятнее всего, является зависимость аномального коэффициента от магнитного поля при данной температуре. Подобная ситуация может также иметь место в процессе истинного намагничивания, когда в результате упорядоченного действия магнитного поля меняется, скажем, число магнитных неоднородностей, являющихся центрами рассеяния.

Влияние парапроцесса может быть учтено в способе, предложенном в работе [72]. Дифференцируя  $\rho_H$  по полю  $B_Z$ , получим:

$$\frac{\partial \rho_h}{\partial B_Z} = R_0 + 4\pi \left( R_S + B_Z \frac{\partial R_S}{\partial B_Z} \right) \frac{\partial M}{\partial B_Z}.$$

В [73] показано, что в случае присутствия мартенситного перехода для сплавов Гейслера, ведущего к изменению кристаллической решетки и электронной структуры материала, коэффициенты НЭХ и АЭХ, если быть точным, зависят от магнитного поля. Однако коэффициенты  $\alpha$  и  $\beta$ , характеризующие зависимости, крайне малы даже при температурах мартенситного перехода, что позволяет пренебречь зависимостью  $R_0$  и  $R_s$  от магнитного поля.

В случае наногранулированных композитных материалов, коэффициенты нормального и аномального Холла можно также считать независящими от поля и температуры, и вышеприведённое выражение для производной  $\frac{\partial \rho_H}{\partial B_a}$  принимает вид:

$$\frac{\partial \rho_h}{\partial B_Z} = R_0 + 4\pi R_S \frac{\partial M_Z}{\partial B_Z}$$

Получив экспериментальные зависимости  $\rho_h$  (B<sub>z</sub>) и M<sub>z</sub> (B<sub>z</sub>) и рассчитав из экспериментальных результатов  $\frac{\partial \rho_h}{\partial B_z}$  и  $\frac{\partial M_z}{\partial B_z}$ , можно построить данную линейную зависимость одной производной от другой. Тогда тангенс угла наклона прямой будет равен  $4\pi R_s$ , а величина отрезка, который отсекает прямая на оси ординат от начала координат, будет равняться  $R_0$ .

На рис. 19 представлен пример расчета, произведенного в данной работе для образца нанокомпозита  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{39,6}(Al-O)_{60,4}$ .

Для сплавов Гейслера рассчитывалось разница сопротивления Холла между соседними точками по соотношению  $\Delta \rho_h = (R_0 + R_s \chi_{para}) \Delta H$ , хотя, в остальном, метод был аналогичен.



**Рис. 19.** Пример метода графического дифференцирования определения коэффициентов Холла в случае нанокомпозита (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>39,6</sub>(Al – 0)<sub>60,4</sub>

#### 2.4 Гранулированные нанокомпозитные материалы

Исследованные работе композиты были получены В В Воронежском технологическом институте [53] методом ионно-лучевого распыления составных мишеней, представляющих собой металлическую основу сплава Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>, на поверхности которой были размещены несколько пластин оксида алюминия. Все особенности данного метода, позволяющего в одном технологическом цикле получать композиционные системы с непрерывно-изменяющимся соотношением металлической и диэлектрической фаз в широких пределах в зависимости от положения подложки относительно мишени, приведены в работах [53], [74], [75]. Осаждение композита производилось на ситалловые подложки, температура которых в процессе напыления не превышала 393 К. Толщина полученных образцов измерялась интерференционным методом и составляла около 2,7 мкм. Элементный состав пленок осуществлялся с помощью энергодисперсионной рентгеновской приставкой Oxford INCA Energy 250 на сканирующем электронном микроскопе JEOL JSM-6380 LV. Согласно данным электронной микроскопии и рентгеновской дифракции (см. детали в [75]) форма гранул близка к сферической, их размер не превышает 2-3 нм, и даже при большом содержании металла (x=60) гранулы разделены тонкой диэлектрической прослойкой Al-O толщиной около 1.0 нм.

После получения композитов с применением фотолитографии были изготовлены образцы в стандартной форме двойного креста для измерения электрической проводимости и эффекта Холла. Ширина проводящего канала *W*=1.3 мм, длина *L*=4 мм, длина и ширина выступов (зондов) на боковых гранях образца составляли 1.7 и 0.5 мм, соответственно, а расстояние между ними - 1 мм.

#### 2.5 Сплавы Гейслера

Поликристаллические образцы  $Fe_{48}Mn_{24}Ga_{28}$  были приготовлены в Tohoku University методом индукционный плавки в атмосфере аргона [76]. После приготовления, поликристаллические образцы были подвергнуты горячей прокатке и последующему отжигу при температуре 1273К в течение 168 часов. Там же был проведен XRD анализ, результаты которого можно увидеть на рис. 20. Более подробно метод получения и структурные характеристики образца приведены в работе [76].



**Рис. 20.** Рентгенограмма образца  $Fe_{48}Mn_{24}Ga_{28}$  при комнатной температуре [76]

По исследованиям в [77] состав  $Fe_{43}Mn_{28}Ga_{29}$  имеет мартенситный переход из парамагнитной кубической аустенитной фазы  $L2_1$  в ферромагнитную тетрагональную мартенситную  $L1_0$ . Такие же структуры имеют аустенитная и мартенситная фаза исследуемого в данной работе состава  $Fe_{48}Mn_{24}Ga_{28}$ , что видно из рентгенограммы.

Образцы для измерения магнитотранспортных свойств вырезались электроискровым способом и представляли собой прямоугольные пластинки длиной 4-7 мм, шириной 2-4 мм и толщиной от 0,5-0,8 мм. Электрические контакты, качество которых играет критическую роль в точности полученных результатов, были сделаны с помощью точечной электросварки. Этот способ обеспечивает точечность контактов и отсутствие дополнительных примесей. Линейные размеры и расстояния между контактами, необходимые для перевода измеренных значений сопротивления в удельные значения и расчета размагничивающего фактора, определялись с помощью компаратора, точность измерений которого составляет порядка 1 мкм.

#### Глава 3. Экспериментальные результаты

#### 3.1 Сплавы Гейслера

В данной работе были получены зависимости ZFC (zero field cooling – нагревание образца, предварительно охлажденного от температуры Кюри в нулевом поле) в процессе нагревания от 80К до 400К и FC (field cooling – охлаждение в поле) в процессе охлаждения от 400К до 80К в слабых (рис. 21) и сильных (рис. 22) магнитных полях.



**Рис. 21.** Температурная зависимость намагниченности Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub> в поле 100 Э

На представленных графиках хорошо заметен фазовый переход первого рода из мартенситной фазы в аустенитную, сопровождаемый температурным гистерезисом. В поле 100 Э такой переход соответствует температурам около 185К и 265К. В поле 5 кЭ

температурам около 177К и 255К (если судить по температурам, соответствующим максимальному наклону кривой), хотя видно, что при данных полях гистерезис присутствует на интервале от 80 К до 320 К (если судить по расхождению кривых ZFC и FC), что позволяет предположить, что на всем указанном интервале образец представляет себя смесь двух фаз. Переход является смешанным, то есть одновременно со структурным фазовым переходом, который считается фазовым переходом первого рода, происходит фазовый переход второго рода, связанный с температурой Кюри.



**Рис. 22.** Температурная зависимость намагниченности Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub> в поле 5 кЭ

Намагниченность насыщения (в поле 5кЭ) мартенситной фазы при температуре 80К порядка  $M_s$ =48 emu/g, что в два раза меньше по сравнению с Fe<sub>50</sub>Mn<sub>22.5</sub>Ga<sub>27.5</sub>,изученном в [78]. Такой результат не является неожиданным, так как магнитные свойства сплава очень сильно зависят от его состава.

Примечательно, что в слабом поле при нагревании (ZFC) кривая намагниченности имеет два хорошо заметных перегиба, а при последующем охлаждении (FC) – лишь один. Полученные результаты можно соотнести с работой [66] для другого состава. На представленной температурной зависимости восприимчивости (рис. 13) видно два гистерезиса: первый из них характеризуется температурами 210 К и 270 К, которые совпадают с температурами гистерезиса на зависимости сопротивления. Второй гистерезис располагается при температурах ниже 170 К, что авторы работы связали с температурой Кюри аустенитной фазы. Отсутствие подобного перегиба на кривой FC зависимости намагниченности в слабом поле или на зависимости восприимчивости, и

также на зависимостях в сильном поле говорит о том, что объем оставшейся аустенитной фазы при данной температуре очень мал. Такое поведение можно объяснить тем, что ~170К – это температура Кюри для аустенитной фазы сплава.

Также была получена температурная зависимость удельного электрического сопротивления (рис. 23). Температуры перехода, определенные из зависимости электросопротивления составляют 190 К и 250 К (соответствующие максимальному наклону кривых), хорошо согласуются с температурами, определенными из зависимости намагниченности. Как видно из зависимости, сопротивление аустенитной фазы больше, чем сопротивление мартенситной фазы, хотя решетка аустенитной фазы считается более симметричной, что противоположно полученным результатам для сплавов на основе NiMnIn и им подобных. Такое поведение электросопротивления может быть связано с резким изменением электронной структуры при структурном переходе из-за искажения решетки. Авторы работы [66], произведя расчеты для сплава  $Fe_{49}Mn_{23.5}Ga_{27.5}$ , высказали, что такое уменьшение сопротивления при переходе в мартенситную фазу связано с тем, что плотность электронных состояний вблизи уровня Ферми увеличивается практически на порядок.



**Рис.23.** Температурная зависимость электросопротивления сплава Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub>

Примечательно, что для режима FC выше 210К и для режима ZFC выше 280К сопротивление линейно зависит от температуры, причем с ростом температуры уменьшается. Это можно связать с результатами работы по корреляции Муйжи, в которой

 $\frac{\partial \rho}{\partial T} < 0$  для металлов с  $\rho > \rho^*$ , где  $\rho^* \approx 150 \ \mu\Omega \cdot \text{сm}$  (хотя  $\rho^*$  может варьироваться со 100 до 300 μΩ·cm). Такой эффект объясняется слабой локализацией в металлах с высоким сопротивлением, но только для неферромагнитных металлов. В нашем случае такая наблюдается при переходе в линейная зависимость парамагнитную фазу с сопротивлением порядка 140 μΩ·cm, что хорошо согласуется с вышеизложенным объяснением. В качестве примера можно привести пленки Co<sub>2</sub>MnGe, Co<sub>2</sub>MnSi и Cu<sub>2</sub>MnAl [78] - сплавы, обладающие отрицательным температурным коэффициентом для сопротивления в парамагнитном состоянии. Данные сплавы имеют очень высокое сопротивление (порядка 500  $\mu\Omega$ ·сm) и малую намагниченность (и, соответственно, малые внутренние магнитные поля). Температурный коэффициент сопротивления у них становится положительным. когда намагниченность **v**величивается. что также подтверждает, что «полупроводниковое» поведение в сплавах с высоким сопротивлением обусловлено слабой локализацией.



**Рис. 24.** Температурная зависимость магнитосопротивления сплава Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub>

Магнитосопротивление, представленное на рис. 24, было измерено в режиме нагревания образца в магнитном поле 13кЭ. Его величина отрицательна на всем интервале измерений и мала по абсолютному значению. Имеется локальный минимум около температуры 160К, что хорошо соотносится с результатами измерения намагниченности в слабом магнитном поле, показанными на рис. 21.



**Рис. 25.** Температурные зависимости сопротивления Холла сплава Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub> при разных температурах

Сопротивление Холла, представленное на рис. 25, было также измерено в режиме нагревания. Его поведение типично для ферромагнитного материала: имеется единственный перегиб, по температуре совпадающий с температурой перехода на графике намагниченности электросопротивления, причем, ниже температуры перехода (порядка 240К) величина достаточно велика ( $\rho_H \approx -5.5 \ \mu\Omega \cdot cm$ ). Выше температуры перехода сопротивление Холла медленно уменьшается по абсолютной величине.

Также были измерены кривые зависимости сопротивления Холла от величины магнитного поля, по которым не было обнаружено фазовых переходов, индуцированных магнитным полем, в отличие от того, как это было обнаружено, например, в сплавах Ni-Mn-In [79].

Рассчитанные зависимости коэффициентов Холла от температуры приведены на рис. 26.



**Рис.26.** Температурные зависимости коэффициентов НЭХ и АЭХ сплава Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub>

Из полученных результатов видно, что коэффициент НЭХ меняет знак, проходя через ноль при температуре 230К. Такое изменение, как правило, предполагает изменение типа основных ностелей заряда, связанное с мартенситным переходом.

Величина коэффициента АЭХ сохраняет знак на всем диапазоне измерений и испытывает резкое умпеньшение на отрезке от 230 К до 280 К, что также связано с мартенситным переходом, судя по совпадению температур перегибов зависимости с аналогичными для вышеизложенных зависимостей.

Полученная температурная зависимость  $R_s$  показывает, что основные механизмы AЭX, такие как собственный механизм с  $R_s \sim \rho^2$ , механизм асимметричного рассеяния с  $R_s = a\rho + b\rho^2$  или предложенный (но не подтвержденный теоретически)  $R_s \sim \rho^{4.0}$  [79], связанный с механизмом бокового смещения в случае рассеяния на кластерах, не подходят для описания исследуемого сплава. К примеру,  $|R_s|$  резко уменьшается, в то время как электросопротивление увеличивается в интервале температур с 240 К до 280 К. Это подтверждает то, что не существует универсальной корреляции между  $R_s$  и  $\rho$  в композитах или гетерогенных ферромагнитных сплавах [80]. Такое поведение можно объяснить с точки зрения эффективной среды. Представим образец как смесь аустенитной и мартенситной фазы. Как видно при высоких температурах, коэффициент АЭХ для аустенитной фазы мал, по сравнению с аналогичным коэффициентом для мартенситной фазы. В диапазоне температур, где по измерениям намагниченности наблюдается структурный переход, при нагреве объём аустенитной фазы увеличивается, как и увеличивается и электросопротивление. Эти два фактора противоположно влияют на величину  $R_s$ . Если  $R_s$  пропорционален объему аустенитной фазы, и  $R_s \sim \rho^2$ , то абсолютная величина коэффициента АЭХ должна была увеличиваться с ростом температуры. Но в температурном диапазоне с 240 К до 280 К объем аустенитной фазы увеличивается быстрее, чем увеличивается величина электросопротивления, и в результате  $R_s$  уменьшается.

#### 3.2. Нанокомпозитные материалы

В данной работе были исследованы магнитные и магнитотранспортные свойства композитов  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{100-x}(Al-O)_{100-x}$ .





**Рис. 27.** Петли гистерезиса нанокомпозитов (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub>(Al-O)<sub>100-x</sub> при разных концентрациях x.

Как видно из графиков, при большой концентрации металла (x=50-60), характер кривых типичен для ферромагнитного материала: зависимость намагниченности от величины магнитного поля нелинейная, присутствует насыщение, когда магнитные моменты гранул коррелированы и, значит, имеет место достаточно для этого сильное обменное взаимодействие между гранулами. При уменьшении доли металлической компоненты, насыщение пропадает, и вид кривых намагничивания приближаются к

ланжевеновскому, характерному для ансамбля слабовзаимодействующих суперпарамагнитных частиц (рис. 27).

Сопротивление, представленное на рис. 28, монотонно возрастает с уменьшением концентрации металлической компоненты, что, видимо, связано с увеличением диэлектрической прослойки между металлическими гранулами. Порядок величины сопротивления характерен для нанокомпозитов, однако при тех же концентрациях оно меньше, чем в композитах  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  и других с подобной диэлектрической компонентой. Данное отличие связано с тем, что матрица Al-O не является хорошим диэлектриком.



**Рис.29.** Концентрационные зависимости электросопротивления и магнитосопротивления (в поле 15 кЭ) нанокомпозита (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub>(Al-O)<sub>100-x</sub>.

Поведение магнитосопротивления, представленное на рис. 28, представляет интерес: его величина оказалась достаточно большой (до 2.5% в поле 15 кЭ) для широкого диапазона сплавов. Достаточно большую величину МС можно объяснить тем, что металлическая компонента CoFeB хорошо известна своей высокой спиновой поляризацией электронов. То, что МС уменьшается при концентрациях х>50, когда металлическая компонента начинает преобладать, и х<20, когда материал представляет собой металлические гранулы в диэлектрической матрице, хорошо согласуется с данными по намагниченности (рис. 28) и по микроструктуре сплавов. Предполагаемый механизм магнитосопротивления – ТМС, которое существует только в случае, если в отсутствии

поля магнитные моменты гранул разориентированы и когда барьер между гранулами имеет малую сравнительно со спин-диффузионной длиной толщину. Принято считать, что магнитосопротивление максимально вблизи порога перколяции, однако на рис. заметно, что при концентрации х~50, когда магнитосопротивление максимально, система не проявляет перколяционного поведения, что хорошо видно из данных по сопротивлению.



**Рис. 29.** Полевые зависимости сопротивления Холла нанокомпозитов (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub>(Al-O)<sub>100-x</sub> при разных концентрациях x.

На рис. 29 представлены результаты измерений сопротивления Холла при различных магнитных полях. В основном, данные результаты нужны для расчета коэффициентов Холла, однако уже из них можно сделать несколько суждений. Вопервых, видно, что максимальная величина сопротивления Холла существенно меньше, чем в  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$ ,  $Fe_x(SiO_2)_{100-x}$ . Также стоит заметить, что сопротивление Холла с уменьшением концентрации увеличивается, хотя намагниченность, дающая вклад, уменьшается. Это подтверждает, что рост сопротивления Холла связан именно с изменением коэффициентов Холла.

На рис. 30 представлены концентрационные зависимости нормального и аномального коэффициентов Холла, а на вставке зависимость коэффициента АЭХ от сопротивления. Важно отметить, что приведены зависимости именно коэффициентов, а не нормальной и аномальной части сопротивления Холла, как сделано в большинстве работ [27], [39], [42], [52], что исключает вклад намагниченности, которая также зависит от

относительной концентрации компонент и температуры.



**Рис. 30.** Концентрационные зависимости коэффициентов НЭХ и АЭХ нанокомпозита  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(Al-O)_{100-x}$ . На вставке представлена корреляция коэффициента АЭХ и электросопротивления для данного материала.

Как видно из графика, нормальный коэффициент Холла увеличивается всего в 2 раза, что хорошо согласуется с теорией [51], в то время как аномальный коэффициент увеличивается в 26 раз. Такое различие показывает различие природы роста нормального и аномального коэффициента Холла. Также, если в статье [48] связывают гигантский НЭХ в парамагнитных нанокомпозитах с квантовой перколяцией, то в исследованной системе переход металл-диэлектрик размыт, и область квантовой перколяции отсутствует. Поэтому, по-видимому, константа НЭХ возрастает незначительно, и это возрастание может быть объяснено чисто геометрическим фактором.

Как уже было сказано, сопротивление АЭХ  $\rho_H^s$  достигает при х=30 значения  $\rho_H^s$  =7.0 мкОм·см (рис. 29), что значительно меньше рекордных значений для гигантского АЭХ в перколяционных системах (100-200 мкОм·см [27], [39]) в непосредственной окрестности перколяционного перехода. Даже если аппроксимировать кривую для коэффициента АЭХ (рис. 30) на большие значения сопротивления, то есть меньшие значения х (непосредственные измерения не позволяют сделать это за счет большого шума), то и в этом случае  $\rho_H^s$  будет значительно меньше 100 мкОм·см. При этом коэффициент АЭХ аморфного сплава значительно больше, чем для Ni или Co. Следовательно, практически исключив два фактора – размерный эффект за счет высокой резистивности аморфного металла гранул и геометрический фактор образования перколяционного кластера - мы получили в результате усиление АЭХ практически на порядок меньшее, чем в перколяционных системах  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  и  $Co_x(SiO_2)_{100-x}$ . Значительная роль размерного эффекта согласуется и с данными работы [32], согласно которым при отжиге нанокомпозитов  $Ni_x(SiO_2)_{1-x}$  изменение распределения гранул по размерам с увеличением их среднего размера до 4.0-5.0 нм значительно уменьшает сопротивление АЭХ. Однако вопрос о том, какой фактор является более важным в случае перколяционных систем, остается неясным. Согласно оценкам [30] геометрический фактор приводит к уменьшению эффективной концентрации носителей примерно в 30 раз. Из расчетов [81] сопротивление Холла линейно-квадратично зависит от отношения длины свободного пробега к радиусу гранул, то есть может дать усиление того же порядка величины. Возможно, совокупное действие этих двух факторов и дает усиление порядка 1000, что наблюдалось в системах  $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$  и  $Co_x(SiO_2)_{100-x}$  [49].

#### Основные результаты и выводы

- Впервые исследованы намагниченность, сопротивление, магнитосопротивление и сопротивление Холла двух высокорезистивных ферромагнитых систем: сплавов Гейслера Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub> и пленок наногранулированных сплавов (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub> (Al-O)<sub>100-x</sub> Показано, что для обеих систем не имеют место характерные для низкорезистивных систем линейная и линейно-квадратичная корреляция между коэффициентом аномального эффекта Холла и сопротивлением, соответствующие механизмам асимметричного рассеяния, Карплюса-Латтинжера (фазы Берри) и бокового смещения.
- 2. В отличие от ранее изученных сплавов Гейслера Ni-Mn-In в сплавах FeMnGa удельное сопротивление мартенситной фазы меньше сопротивления аустенитной фазы, несмотря на то, что аустенитная фаза имеет более симметричную кристаллическую ячейку. Это указывает на различную микроструктуру мартенситной фазы указанных сплавов. Магнитосопротивление сплавов Гейслера FeMnGa в поле 13 кЭ отрицательно во всем исследованном интервале температур 77-300 K, изменяется от -0.02 до -0.15% и его температурное поведение, как и сопротивления, хорошо коррелирует с данными по намагниченности.
- 3. Впервые на основе комплексного анализа магнитных и магнитотранспортных свойств концентрационные зависимости коэффициентов определены нормального И аномального эффекта Холла в наногранулированных сплавах (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub> (Al-O)<sub>100-x</sub> при приближении к перколяционному переходу. Показано, что при уменьшении доли металлической фазы от 60 до 30 % в соответствии с теорией перколяции коэффициент нормального эффекта Холла возрастает в несколько раз по сравнению с исходным чистым металлом, тогда как коэффициент аномального эффекта Холла возрастает более, чем на порядок. Таким образом доказано, что гигантский эффект Холла в ферромагнитных нанокомпозитах при приближении к порогу перколяции не является следствием уменьшения эффективной концентрации носителей тока ИЛИ геометрического фактора.
- 4. Получено, что экспериментальные данные для константы аномального эффекта Холла наногранулированных сплавов (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub> (Al-O)<sub>100-x</sub> при комнатной температуре для диапазона концентраций х = 29 ÷ 56 описываются зависимостью R<sub>s</sub>~ρ<sup>m</sup>, где р-сопротивление, m = 0.46 ± 0.10. Найденная корреляция близка к теоретически предсказанной в теории аномального эффекта Холла для модели прыжковой проводимости Миллера-Абрахамса.

#### Список литературы

- [1] С. В. Вонсовский, «Магнетизм,» Наука, 1971.
- P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky μ H. Sowers, «Layered Magnetic Structures: Evidence for Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers,» *Phys. Rev. lett.*, τ. 57, p. 2442, 1986.
- [3] R. Coehoorn, «Giant magnetoresistance and magnetic interactions in exchange-biased spin-valves,» *Novel Magnetoelectronic Materials and Devices,* 2003.
- [4] Э. Л. Нагаев, «Манганиты лантана и другие магнитные проводники с гигантским магнитосопротивлением,» Успехи физических наук, т. 166, № 8, 1996.
- [5] E. H. Hall, «On a New Action of the Magnet on Electric Currents,» Am. J. Math., τ. 2, pp. 287-292, 1879.
- [6] В. Прудников, А. Грановский, А. Казаков, Д. Меттус, М. Прудникова и И. Титов, «Гальваномагнитные явления в ферромагнитных металлах и сплавах,» Физический Факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 2012.
- [7] Е. Н. Hall, *Philos. Magn.*, т. 12, р. 157, 1881.
- [8] E. M. Pugh и N. Rostoker, «Hall Effect in Ferromagnetic Materials,» *Rev. Mod. Phys.*, т. 25, р. 151– 157, 1953.
- [9] A. Kundt, Wien. Ann., т. 49, р. 257, 1893.
- [10] E. M. Pugh и T. W. Lippert, «Hall e.m.f. and Intensity of Magnetization,» *Phys. Rev.,* т. 42, р. 709– 713, 1932.
- [11] R. Karplus μ J. M. Luttinger, «Hall Effect in Ferromagnetics,» Phys. Rev., τ. 95, p. 1154–1160, 1954.
- [12] N. Nagaosa, S. Jairo, O. Shigeki, A. H. MacDonald и N. P. Ong, «Anomalous Hall effect,» *Rev. Mod. Phys.*, т. 82, р. 1539, 2010.
- [13] J. Smith, «The spontaneous hall effect in ferromagnetics 1,» Physica (Amsterdam), τ. 21, p. 877– 887, 1955.
- [14] J. Smith, «The spontaneous hall effect in ferromagnetics 2,» *Physica (Amsterdam)*, τ. 24, pp. 39-51, 1958.
- [15] А. Н. Ведяев, А. Б. Грановский и О. А. Котельникова, «Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах,» Издательство МГУ, 1992.
- [16] А. Ведяев, А. Грановский и И. Кондорский Е., ФММ, т. 40, р. 455, 1975.

- [17] L. Berger, *Phys. Rev. B*, т. 2, р. 4559, 1970.
- [18] J. M. Luttinger, «Theory of the Hall Effect in Ferromagnetic Substances,» Phys. Rev., τ. 112, pp. 739-751, 1958.
- [19] Yao, Y. L. Kleinman, A. H. MacDonald, J. Sinova, T. Jungwirth, D. S. Wang, E. Wang и Q. Niu, *Phys. Rev. Lett.*, т. 92, 2004.
- [20] X. Wang, J. R. Yates, I. Souza и D. Vanderbilt, Phys. Rev. B, т. 76, 2006.
- [21] X. Wang, J. R. Yates, I. Souza и D. Vanderbilt, Phys. Rev. B, т. 76, 2006.
- [22] J. Feng, R. Pahsley и M. Nicolet, «Magnetoelectric properties of magnetite thin films,» *Journal of Physics C: Solid State Physics*, т. 8, № 7, р. 1010, 1975.
- [23] A. Fernandez-Pacheco, J. M. DeTeresa, J. Orna, L. Morellon, P. A. Algarabel, J. A. Pardo и M. R. Ibarra, *Phys. Rev. B*, т. 77, № 100403, 2008.
- [24] D. Venkateshvaran, W. Kaiser, A. Boger, M. Althammer, S. R. Rao, S. T. Goennenwein, M. Opel и R. Gross, *Phys. Rev. B*, т. 78, 2008.
- [25] S. Zhu, W. Or и G. Wu, Apl. Phys. Lett., т. 95, 2009.
- [26] J. Webster, «Magnetic order and phase transition in Ni2MnGa,» Philos. Magn. B, τ. 49, 1984.
- [27] A. B. Pakhomov, X. Yan и B. Zhao, «Giant Hall effect in percolating ferromagnetic granular metalinsulator films,» *Appl. Phys. Lett.*, т. 67, р. 3497, 1995.
- [28] X. Jing, N. Wang, A. Pakhomov, K. Fung и X. Yan, Phys. Rev. B, т. 53, 1996.
- [29] A. Pakhomov, X. Yan и Y. Xu, «Observation of giant Hall effect in granular magnetic films,» *J. Appl. Phys.,* т. 79, 1996.
- [30] A. Pakhomov и X. Yan, «Critical behavior of resistivity and Hall resistivity,» Physica A, т. 229, 1996.
- [31] X. N. Jing, N. Wang, A. B. Pakhomov, K. K. Fung и Y. X., «Effect of annealing on the giant Hall effect,» *Phys. Rev. B,* т. 53, p. 21, 1996.
- [32] A. Pakhomov и X. Yan, «Resistivity and Hall resistivity in percolating (NiFe)-SiO2 films,» *Sol. St. Comm.*, т. 99, № 3, 1996.
- [33] A. Pakhomov, X. Yan, N. Wang, X. Jing, B. Zhao, K. Fung, J. Xhie, T. Hung μ S. Wong, «On the origin of the giant Hall effect in magnetic granular metals,» *Physica A*, τ. 241, 1997.
- [34] А. В. Ведяева, А. Б. Грановский, А. В. Калицов и Б. Ф., «Аномальный эффект Холла гранулированных сплавов,» *Письма в ЖЭТФ*, т. 112, № 6, 1997.
- [35] M. V. Prudnikova, A. B. Granovsky μ V. N. Prudnikiov, «Proceedings of the Russian-Japanese Joint Seminar «The Physics and Modeling of Intelligent Materials and their Applications» (PMIMA),»

1986.

- [36] F. Brouers, A. Granovsky, A. Sarychev и K. A., «The influence of boundary scattering on transport phenomena in ferromagnetic metal-dielectric nanocomposites,» *Physica A*, т. 241, 1997.
- [37] А. Н. Ведяев, Н. Г. Караченская, О. А. Котельникова и Н. В. Рыжанова, *Вестник МГУ*, т. 2, р. 51, 1993.
- [38] E. Kogan и V. Ustinov, Sol. St. Comm., т. 43, р. 743, 1982.
- [39] А. Б. Аронзон, Д. Ю. Ковалев, А. Н. Лагарьков, Е. З. Мейлихов, В. Рыльков, Е. А. Седова, Н. Негре, М. Гойран и Д. Леотин, «Аномальный эффект Холла в гранулированных пленках Fe/SiO2 в режиме туннельной проводимости,» Письма в ЖЭТФ, т. 70, № 2, 1999.
- [40] M. Nemeth и B. Muhlshlegel, Sol. St. Comm., т. 66, р. 999, 1988.
- [41] Ю. М. Гальперин, Е. П. Герман и В. Г. Карпов, ЖЭТФ, т. 99, р. 343, 1992.
- [42] Б. А. Аронзон, А. Б. Грановский, Д. Ю. Ковалев, Е. З. Мейлихов, В. Рыльков и М. В. Седова, «Концентрационное поведение аномального эффекта Холла в гранулированных пленках Fe/SiO2 ниже порога протекания,» Письма в ЖЭТФ, т. 71, № 11, 2000.
- [43] X. X. Zhang, C. Wan, H. Liu, Z. Q. Li и P. Sheng, «Giant Hall Effect in Nonmagnetic Granular Metal Films,» *Phys. Rev. Lett.*, т. 86, р. 24, 2001.
- [44] B. A. Aronzon, A. A. Likalter, V. V. Rylkov, A. K. Sarychev, M. A. Sedova μ A. E. Varfolomeev, «Studies of Magnetoresistance and Hall Effect in Insulating Fe/SiO2 Granular Films,» *Phys. Stat. Sol.*, τ. 205, p. 151, 1998.
- [45] К. Ү. Н. К. е. а. Sato H., J. Magn. Soc. Japan, т. 23, р. 73, 1999.
- [46] J. Denardin, M. Knobela, X. Zhangb μ A. Pakhomov, «Giant Hall effect in superparamagnetic granular films,» JMMM, τ. 262, 2003.
- [47] X. Zhang, C. Wan, H. Liu, Z. Li, P. Sheng и J. Lin, Phys. Rev. Lett., т. 86, р. 5562, 2001.
- [48] P. S. Chuncheng Wan, «Quantum interference and the giant Hall effect in percolating systems,» τ. 66, № 075309, 2002.
- [49] J. Denardin, A. Pakhomov, M. Knobel и X. Zhang, «JMMM,» т. 15, р. 262, 2000.
- [50] S. Broadbent μ S. Hammersley, «Precolation processes I. Crystals and mazes,» Proc. Carnb. Phil. Soc., τ. 53, 1957.
- [51] М. Е. Левинштейн, М. С. Мур и А. Л. Эфрос, «Гальваномагнитные явления в неупорядоченных системах. Теория и приложения,» *ЖЭТФ*, т. 69, р. 6, 1975.
- [52] W. Jianfeng, Z. Wenqin, L. Zhihai, L. Zhonglin, L. Xingchong, X. Jianping, L. Yingbin, L. Liyam, Z.

Fengming и D. Youwei, J. Phys. D: Appl. Phys., т. 40, 2007.

- [53] С. А. Гриднев, Ю. Е. Калинин, А. В. Ситников и О. В. Стогней, «Нелинейные явления в нано- и микрогетерогенных системах,» БИНОМ. Лаборатория знаний, 2012.
- [54] J. C. Denardin, A. B. Pakhomov, A. L. Brandl, L. M. Socolovsky μ K. M., «Blocking phenomena in granular magnetic alloys through magnetization, Hall effect, and magnetoresistance experiments,» *Appl. phys. lett.*, τ. 82, p. 763, 2003.
- [55] V. N. Prudnikov, A. M. Saletsky, A. P. Kazakov, I. S. Dubenko, A. B. Granovsky, K. P. N. O. S. Ivanova, M. V. Prudnikova, A. K. Pathak, N. Ali u A. P. Zhukov, «Magnetocaloric effect in Ni-Mn-In based Heusler alloys: direct measurements of adiabatic changes of temperature near phase transitions,» *Moscow International Symposium on Magnetism: Abstracts*, 2011.
- [56] A. Kazakov, V. Prudnikov, A. Granovsky, N. Perov, P. Konovalov, I. Dubenko, N. Ali, A. Zhukov и J. Gonzalez, «Phase transitions, magnetotransport and magnetocaloric effect in a new family of quaternary Ni-Mn-In-Z Heusler alloys,» *Recent Trends in Nanomagnetism, Spintronic and their Applications: Abstracts*, 2011.
- [57] А. Казаков, «Магнитокалорический эффект в сплавах Гейслера на основе Ni-Mn-In,» Сборник тезисов докладов международной конференции студентов, аспирантов и молодых ученых по фундаментальным наукам «Ломоносов-2011», 2011.
- [58] A. Kazakov, V. Prudnikov, A. Granovsky, M. Prudnikova, I. Dubenko, A. Pathak, N. Ali μ A. Zhukov, «Anomalous and ordinary Hall effects in Ni-Mn-In-Z Heusler alloys,» *Moscow International Symposium on Magnetism: Abstracts*, 2011.
- [59] I. Dubenko, A. Pathak, A. Kazakov, V. Prudnikov, S. Stadler, A. Granovsky μ N. Ali, «Magnetocaloric effect and multifunctional properties of Mn-based Heusler alloys,» *Moscow International Symposium on Magnetism: Abstracts*, 2011.
- [60] Т. Omori, K. Watanabe, R. Umetsu, R. Kainuma и K. Ishida, Appl. phys. lett., т. 95, 2009.
- [61] T. Omori, K. Watanabe, R. Y. Umetsu, R. Kainuma и K. Ishida, «Martensitic transformation and magnetic field-induced strain in Fe–Mn–Ga shape memory alloy,» *Appl. Phys. Lett.*, т. 95, 2009.
- [62] M. Wuttig, J. Li и C. Craciunescu, Scr. Mater., т. 44, р. 2393, 2001.
- [63] H. Liu, M. Zhang, Y. T. Cui, Y. Q. Zhou, W. H. Wang, G. H. Wu, X. X. Zhang и G. Xiao, *Appl. Phys. Lett.,* т. 82, p. 424, 2003.
- [64] G. D. Liu, J. L. Chen, Z. H. Liu, X. F. Dai, G. H. Wu, B. Zhang и X. X. Zhang, *Appl. Phys. Lett.*, т. 87, 2005.
- [65] L. Manosa, A. Planes, M. Acet, E. Duman и E. F. Wassermann, JMMM, т. 272, р. 2090, 2004.
- [66] W. Zhu, E. K. Liu, L. Feng, X. D. Tang, J. L. Chen, G. H. Wu, H. Y. Liu, F. B. Meng μ H. Z. Luo, «Magnetic-field-induced transformation in FeMnGa alloys,» *Appl. Phys. Lett.*, τ. 95, 2009.

- [67] I. Galanakis, P. H. Dederichs и N. Papanikolaou, Phys. Rev. B, т. 66, 2002.
- [68] S. Yu, Z. Liu μ G. Liu, «Large magnetoresistance in single-crystalline Ni50Mn50–xInx alloys (x=14–16) upon martensitic transformation,» *Appl. Phys. Lett.*, **τ**. 89, 2006.
- [69] A. Pathak, B. Gautam и I. Dubenko, «Phase transitions and magnetoresistance in Ni50Mn50–xInx Heusler alloys,» *J. Appl. Phys.*, т. 103, 2008.
- [70] A. Pathak, I. Dubenko μ C. Pueblo, «Magnetoresistance and magnetocaloric effect at a structural phase transition from a paramagnetic martensitic state to a paramagnetic austenitic state in Ni50Mn36.5In13.5 Heusler alloys,» *Appl. Phys. Lett.*, τ. 96, 2010.
- [71] A. Pathak, I. Dubenko и S. Stadler, «Magnetic and electrical properties of Ni50Mn35In15–xSix Heusler alloys,» *Appl. Phys. Lett.*, т. 105, 2009.
- [72] К. Белов и Е. Свир, «Эффект Холла в ферритах,» УФН, т. 96, pp. 21-38, 1968.
- [73] А. Б. Грановский, В. Прудников и А. Казаков, ЖЭТФ, т. 142, № 5, 2012.
- [74] Ю. Калинин, А. Ремизов и А. Ситников, *ФТТ*, т. 46, р. 2076, 2004.
- [75] О. Стогней, А. Ситников, К. Ю.Е. и др., *ФТТ,* т. 49, р. 158, 2007.
- [76] Т. Omori и К. Watanabe, Scripta Materialia, т. 64, р. 669–672, 2011.
- [77] T. Omori, K. Watanabe, R. Y. Umetsu, R. Kainuma и K. Ishida, Appl. Phys. Lett., т. 95, 2009.
- [78] J. Gunnarsson, M. Calandra и J. Han, Rev. Modern Phys., т. 75, р. 1085, 2003.
- [79] V. F. Gantmakher, *JETP*, т. 94, р. 626, 2011.
- [80] А. В. Granovsky, А. V. Vedyayev и F. Brouers, JMMM, т. 136, р. 229, 1994.
- [81] А. В. Ведяев, А. Б. Грановский, А. В. Калицов и Ф. Брауэр, *ЖЭТФ,* т. 112, № 6, 1997.

# Приложения

#### Благодарности

В заключение автор выражает благодарность своему научному руководителю Грановскому Александру Борисовичу за неоценимую помощь и поддержку в работе над дипломом; Прудникову Валерию Николаевичу и Казакову Александру Павловичу за наставничество и ценнейшие советы; Герберу А., Калинину Ю. Е., Ситникову А. В. и Ховайло В.В. за предоставление образцов для измерений и содействие в работе; Михайловскому Юрию Олеговичу за обсуждение работы. Также автор выражает благодарность всем сотрудникам и студентам кафедры за дружескую поддержку и помощь.

### Список публикаций

#### I. Публикации в журналах

- I. Dubenko, T. Samanta, A. Quetz, A. Kazakov, I. Rodionov, D. Mettus, V. Prudnikov, S. Stadler, P. Adams, J. Prestigiacomo, A. Granovsky, A. Zhukov, and N. Ali, The comparison of direct and indirect methods for determining the magnetocaloric parameters in the Heusler alloy Ni50Mn34.8In14.2B, Appl. Phys. Lett. 100, 192402 (2012).
- I. Dubenko, T. Samanta, A. Quetz, A. Kazakov, I. Rodionov, D. Mettus, V. Prudnikov, S. Stadler, P.Adams, J. Prestigiacomo, A. Granovsky, A. Zhukov, and N. Ali, The Adiabatic Temperature Changes in the Vicinity of the First Order Paramagnetic-Ferromagnetic Transition of the Ni-In-Mn-B System, IEEE Trans. Magnetics 48, n11 3738-3741(2012)
- V. V. Khovaylo, T. Omori, K. Ando, X. Xu, and R. Kainuma, A. P. Kazakov, V. N. Prudnikov, E. A. Gan'shina, A. I. Novikov, Yu. O. Mikhailovsky, D. E. Mettus, and A. B. Granovsky, Magnetotransport properties of Fe48Mn24Ga28 Heusler alloys, Phys.Rev.B 87, 174410 (2013)
- E. A. Gan'shina, A.I. Novikov, G.S. Zykov, D. E. Mettus, A. P. Kazakov, R. Kainuma, V.V. Khovaylo, V.N. Prudnikov, A.B/ Granovski, Magneto-optical spectroscopy of martensitic transition in Heusler alloys Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub>, Physics of the Solid State, Vol. 55, No. 9, pp.1857-1860 (2013)

- I. D. Rodionov, D. E. Mettus, A. P. Kazakov, M.V. Prudnikova, V. N. Prudnikov, I. S. Dubenko, and A. B. Granovskii, Correlation between Magnetoresistance and Magnetic Entropyat First\_Order and Second\_Order Phase Transitions in Ni–Mn–In–Si Heusler Alloys, Physics of the Solid State, Vol. 55, No. 9, pp. 1861–1865, (2013)
- Yu. O. Mikhailovskii, D. E. Mettus, A. P. Kazakov, V. N. Prudnikov, Yu. E. Kalinin, A. S. Sitnikov, A. Gerber, D.Bartov, A. B. Granovskii Anomalous Hall Effect in (Co41Fe39B20)x(Al--O)[100--x] nanocomposites, JETP Lett. 97, n 8, 473 (2013)

#### **II.** Тезисы к конференциям

- I. Dubenko, T. Samanta, A. Quetz, A. Kazakov, I. Rodionov, D. Mettus, V. Prudnikov, S. Stadler, P. Adams, J. Prestigiacomo, A. Granovsky, A. Zhukov and N. Ali, The Adiabatic Temperature Changes in the Vicinity of the First Order Paramagnetic-Ferromagnetic Transition of the Ni-In-Mn-B System, INTERMAG 2012, EV-01, p.133, May 7-11, Vancouver, Canada 2012, (international).
- A. P. Kazakov, V.N. Prudnikov, I.S. Rodionov, D. Mettus, N.S. Perov, A.B. Granovsky, A. Zhukov, J. Gonzalez, I. Dubenko, A.K. Pathak, N. Ali, S. Stadler, P. Adams, J. Prestigiacomo, Magnetic, magnetotransport and magnetocaloric properties of quaternary Ni-Mn-In-Z Heusler alloys (invited), ICM 2012 19th International Conference on Magnetism, July 8-13, Busan, South Korea (2012).
- A.B. Granovsky, V.N. Prudnikov, I.D. Rodionov, D.E. Mettus, I. S. Dubenko, A. P. Zhukov, Magnetotransport and magnetocaloric properties of Ni-Mn-In-Z Heusler alloys, (invited), Donostia International Conference on Magnetism and Applications, San Sebastian, Spain, September 8-15, (2013)
- A.B. Granovsky, V.N. Prudnikov, E.A. Gan'shina, A.P. Kazakov, I.D. Rodionov, D.E. Mettus, I.A. Novikov, I. S. Dubenko, A. Zhukov, Magnetic, magnetocaloric, magnetotransport and magneto-optical properties of Ni-Mn-In-Z Heusler alloys, (invited), Euro-Asian Symposium "Trends in Magnetism: Nanomagnetism", September 15-21, 2013, Vladivostok, Russian Island, Russia
- A.B. Granovsky, V.N. Prudnikov, A.P. Kazakov, E.A. Gan'shina, I.A. Novikov, D.E. Mettus, I.D. Rodionov, A. Zhukov, I. S. Dubenko, Magnetic, magnetotransport and magneto-optical properties of Heusler alloys based on Ni-Mn-In-Z, (invited), 17<sup>th</sup>

symposium "Nanophysics and nanpelectronics", March 11-15, 2013, Nizhnii Novgorod, Russia,

- Д. Е. Меттус, А. П. Казаков, Магнитные и магнитотранспортные свойства монокристалла Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub>, Международная конференция студентов, аспирантов и молоды ученых «Ломоносов-2012», Апрель, Москва, Россия
- Д. Е. Меттус, А. П. Казаков, Магнитные и магнитотранспортные свойства сплава Fe<sub>48</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>28</sub>, Международная Балтийская школа твердого тела и магнетизма, 2012, Август, Калининград.
- И. Д. Родионов, Д. Е. Меттус, Исследования магнитотранспортных, магнитных и магнитокалирочиеских свойств сплавов Гейслера Ni-Mn-In и Fe-Mn- Ga, Всероссийский конкурс студентов и аспирантов в сфере новых материалов и технологий, 2012, Декабрь, Россия.
- Д. Е. Меттус, Ю. О. Михайловский, Аномальный эффект Холла гранулированных нанокомпозитов (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub> (Al-O)<sub>1-x</sub>, Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2013», Апрель, Москва, Россия.