

АНОМАЛЬНЫЙ ЭФФЕКТ ХОЛЛА В ГРАНУЛИРОВАННЫХ ПЛЕНКАХ Fe/SiO₂ В РЕЖИМЕ ТУННЕЛЬНОЙ ПРОВОДИМОСТИ

Б.А.Аронзон, Д.Ю.Ковалев, А.Н.Лагарьков, Е.З.Мейлихов¹⁾, В.В.Рыльков, М.А.Седова, Н.Негре¹⁾, М.Гойран¹⁾, Дж.Леотин¹⁾

Российский Научный Центр "Курчатовский Институт", 123182 Москва, Россия

НИЦ прикладных проблем электродинамики, 127412 Москва, Россия

LPMC and SNCMP, 31077 Toulouse Cedex, France

Поступила в редакцию 21 мая 1999 г.

Установлено, что эффект Холла в нанокompозитных пленках Fe/SiO₂ в области туннельной активационной проводимости является аномальным, то есть холловское сопротивление ρ_h пропорционально намагниченности и обусловлено спин-орбитальным взаимодействием. При этом параметрическая связь холловского и продольного (ρ_{xx}) сопротивлений $\rho_h \propto \rho_{xx}^m$ (параметр – температура) характеризуется существенно меньшим значением показателя степени m , чем в однородном ферромагнитном металле. Это обстоятельство связывается с особенностями механизма эффекта Холла в прыжковом режиме, в нашем случае – с интерференцией амплитуд туннельных переходов в совокупности из трех гранул.

PACS: 73.50.-h

В последнее время заметный интерес проявляется к композитам на основе ферромагнитных наночастиц, в которых наблюдается гигантское магнитосопротивление (ГМС) [1,2] и гигантский эффект Холла (ГЭХ) [3,4]. Специфика ферромагнитных металлов, заключается в том, что их удельное холловское сопротивление

$$\rho_h = R_0 B + R_s 4\pi M \quad (1)$$

имеет две составляющие, одна из которых (нормальная) обусловлена силой Лоренца и пропорциональна магнитной индукции B , а другая (аномальная) – пропорциональна намагниченности M (R_0 и R_s – соответствующие константы нормального и аномального эффекта Холла). Последняя связана с влиянием спин-орбитального взаимодействия (COB) на рассеяние спин-поляризованных электронов и существенно превышает нормальную составляющую [5]. В частности, для гранулированной системы (NiFe) _{x} /(SiO₂)_{1- x} [3,4] установлено, что константа аномального эффекта Холла (АЭХ) R_s на два порядка больше R_0 и может на четыре порядка превышать свое значение в случае однородного металла ($x = 1$). Однако, несмотря на заметную величину эффекта Холла в этих материалах, выполненные до сих пор эксперименты [3, 4] целиком относятся к исследованию поведения ГЭХ на металлической стороне перколяционного перехода.

С физической точки зрения, наиболее интересным представляется изучение ГЭХ в той области составов композита, где наиболее ярко выражено ГМС [1,2], то есть в диэлектрической фазе. Исходя из аналогии с полупроводниками, где переход к прыжковой проводимости сопровождается сменой механизма эффекта Холла, в нанокompозите также можно ожидать смены механизма АЭХ. Действительно, еще Холстейном [6] было показано, что вероятность туннельного перехода между двумя центрами не

¹⁾ E.Z.Meilikhov, N.Negre, M.Goiran, J.Leotin

содержит поправок, линейных по магнитному полю. Поэтому при описании эффекта Холла необходимо рассматривать как минимум три центра и учитывать возможность не прямых туннельных переходов [6]. Как результат, связь между холловским и продольным сопротивлениями ослабляется: $\rho_h \propto (\rho_{xx})^m$, где показатель степени $m < 1$. В частности, предсказывается $m = 0.35$ для проводимости с переменной длиной прыжка и $m = 0.5$ – для проводимости с постоянной энергией активации [7], что заметно меньше, чем при обычной зонной проводимости ($m = 1$).

Туннельная проводимость в магнитных композитных материалах также не содержит члена, линейного по магнитному полю. Однако нам не известны экспериментальные работы, посвященные описанию АЭХ в этих условиях.

Таким образом, вопрос о возможности существования АЭХ при туннельном переносе и его поведение в реальных системах на основе магнитных нанокompозитов представляется вполне закономерным и заслуживающим интереса.

Отсутствие систематических экспериментальных данных по эффекту Холла в магнитных нанокompозитах в диэлектрической области обусловлено высоким уровнем шумов, присущим системам с перколяционным характером проводимости, и паразитным влиянием возникающего в этих условиях ГМС, связанного с асимметрией в расположении холловских зондов. В данной работе исследованы особенности эффекта Холла в образцах на основе пленок Fe/SiO₂ с очень малой асимметрией холловских зондов при использовании цифровых методов накопления и фильтрации сигнала, что позволило фиксировать изменение сопротивления асимметрии в магнитном поле на уровне $\sim 10^{-2}\%$.

Образцы, снабженные парой токовых контактов и двумя парами потенциальных (холловских) зондов, были изготовлены в стандартной геометрии двойного креста. Ширина проводящего канала $W = 2$ мм, длина $L = 7$ мм, при этом точность совмещения холловских зондов составляла величину порядка 10 мкм.

Образцы были получены путем совместного ионно-лучевого распыления Fe и SiO₂ с использованием составной мишени на поликоровые подложки, имеющие комнатную температуру. Характерный размер гранул при этом составлял несколько нанометров; толщина пленок d варьировались в диапазоне 0.2 – 0.8 мкм [8]. Важно отметить, что при напылении пленок на нагретую подложку (до $T = 250^\circ\text{C}$), происходило не только увеличение среднего размера гранул (\sim в 2 раза), но и достаточно заметное (по данным электронных снимков – в несколько раз) увеличение содержания Fe в образцах. Это указывало на разброс размеров гранул и существование малых частиц, не разрешимых в электронном микроскопе. Данное обстоятельство присуще, по-видимому, широкому классу гранулированных систем, о чем свидетельствуют результаты недавних исследований пленок NiFe/SiO₂ [4], Co/AlO [2] и Cu/SiO₂ [9].

В [8] было установлено, что переход к активационной прыжковой проводимости в образцах происходит при объемном содержании железа $x < x_c \approx 0.6$. В этой области в непосредственной близости от перколяционного перехода пленки демонстрируют достаточно большое отрицательное ГМС, достигающее 5% [8], что заметно больше, чем для системы Ni/SiO₂ [10] и близко к величине 4,5%, полученной в [1] для системы Co/SiO₂.

Измерения эффекта Холла проводились в магнитных полях до 10 кЭ при температурах $T = 77 - 300$ К в режиме постоянного напряжения. Предварительные исследования показали, что эффект Холла достаточно сильно зависит от содержания

Fe вблизи перехода металл-диэлектрик ($x \leq 0.6$). При этом точность определения состава ($\sim 10\%$ [8]) оказывается явно недостаточной для изучения тенденций в поведении эффекта Холла в диэлектрической области.

На рис.1 представлены зависимости $G(T)$ для нескольких образцов с содержанием железа $x \leq 0.6$ в часто используемых координатах $\log(G) - T^{-1/2}$. Сильное уменьшение G с понижением температуры свидетельствует об активационном характере проводимости. В нашем случае относительное уменьшение G при изменении T от 300 до 4.2 К достигает четырех порядков, тогда как для образцов с металлической проводимостью, исследованных в [3,4], оно не превышало 2. При этом данные зависимости близки к линейной вплоть до $T \approx 6$ К. Это обстоятельство, согласно [11], скорее всего определяется экспоненциально широким распределением гранул по размерам, при котором проводимость следует "закону $1/2$ ": $G(T) = G_0 \exp[-(T_0/T)^{1/2}]$, где параметр T_0 определяется содержанием металла:

$$kT_0 \approx (e^2/\epsilon\alpha_0) (a_0/\lambda)^{3/2} \psi(x), \quad \psi(x) = x^{-1/2} \left[1 - (x/x_c)^{1/3} \right]. \quad (2)$$

Здесь ϵ – диэлектрическая проницаемость, λ – длина спада волновой функции электрона в диэлектрике, a_0 – характерный размер гранул. Найденные значения T_0 приведены в подписи к рис.1. Оценки согласно (2) показывают, что хотя параметр T_0 заметно изменяется, вариация x не превышает в нашем случае 0.01, то есть меньше 5% при $x_c = 0.6$. Другими словами, вблизи перехода величина T_0 является гораздо более надежной характеристикой близости образцов к перколяционному переходу, чем x , и поэтому естественно их дополнительно характеризовать параметром T_0 .

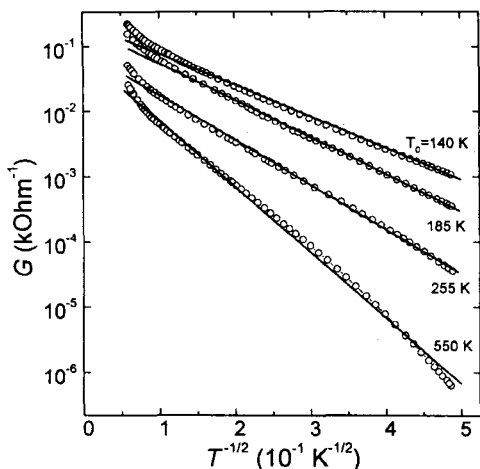


Рис.1. Температурные зависимости проводимости G диэлектрических образцов различных составов, близких к порогу перколяции. T_0 , К: 1 – 140, 2 – 185, 3 – 255, 4 – 550

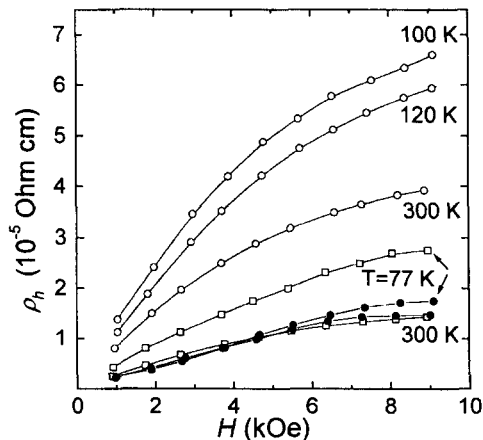


Рис.2. Магнитолевые зависимости холловского сопротивления ρ_h образцов с диэлектрическим ($T_0 = 255$ К (\circ) и $T_0 = 140$ К (\square)) и металлическим ($x \approx 0.7$ (\bullet)) характером проводимости при различных температурах T , К: 1 – 77; 2 – 100; 3 – 120; 4 – 300

Холловское сопротивление R_h определялось по разности значений поперечного сопротивления $R_{xy} = V_y/I_x$, отвечающих положительному (R_{xy}^+) и отрицательному (R_{xy}^-) направлениям магнитного поля: $R_h = (R_{xy}^+ - R_{xy}^-)/2$. С помощью эталонного

образца был установлен знак эффекта Холла. Для всех образцов он оказался положительным, как и для монокристаллического железа [12].

На рис.2 представлены полевые зависимости удельного холловского сопротивления $\rho_h(H) = R_h(H)d$ при различных температурах для диэлектрического образца с $T_0 = 255$ К (светлый кружок). На этом же рисунке для сравнения приведены кривые $\rho_h(H)$ для диэлектрического образца, наиболее близкого к перколяционному переходу ($T_0 = 140$ К, квадратные точки), а также для образца с металлическим характером проводимости ($x \approx 0.7$, черные кружки). Видно, что в двух последних случаях формы зависимостей близки, причем в полях ≈ 10 кЭ кривые $\rho_h(H)$ заметно насыщаются, что типично для ферромагнитных материалов с металлической проводимостью в условиях проявления пропорционального намагниченности АЭХ [3-5]. При этом, однако, величина ρ_h для диэлектрического образца существенно сильнее растет с уменьшением температуры. То есть, факт совпадения значений ρ_h в этих образцах при $T = 300$ К носит скорее случайный характер.

Интересно другое обстоятельство – с уменьшением содержания Fe форма зависимости $\rho_h(H)$ становится более "закругленной" (сравни кривые $\rho_h(H)$ для диэлектрических образцов на рис.2 при $T = 300$ К). Существенно, что аналогичным образом изменяется с уменьшением доли металла и форма кривой намагниченности $M(H)$, которая трансформируется при этом в более "закругленную" ланжевенновскую функцию [10]. Для установления связи между $\rho_h(H)$ и $M(H)$ нами были изготовлены два идентичных образца ($T_0 = 150$ К), один из которых (холловский) служил для изучения полевой зависимости $\rho_h(H)$, а другой – для измерения намагниченности методом магнитооптического эффекта Керра [10]. Результаты измерений при $T = 77$ и 300 К приведены на рис.3²⁾. Из рисунка явствует, что полевые зависимости $\rho_h(H)$ и $M(H)$ совпадают, как и в ферромагнитных металлах. Отметим, однако, что коэффициент аномального эффекта Холла $R_s = \rho_h(H)/M(H)$ достигает при $T = 77$ К величины (см. вставку), равной $1.6 \cdot 10^{-7}$ Ом-см/Гс, что на пять порядков превышает значение R_s в объемном железе [12]. Учитывая, что с уменьшением x ρ_h растет (см. рис.2), а M падает, можно ожидать, что в более диэлектрических образцах величина R_s должна быть еще больше. Столь сильное увеличение невозможно объяснить, рассматривая эффект Холла в отдельных гранулах [3,4].

Наконец, обратимся к параметрической зависимости холловского сопротивления от продольного сопротивления (параметр температура) для диэлектрических образцов (рис.4). Видно, что для всех образцов R_h увеличивается с ростом R_{xx} (то есть с уменьшением температуры). Аппроксимируя зависимости степенной функцией $R_h \propto R_{xx}^m$, мы нашли показатель степени $m = 0.44 - 0.59$ при среднем значении $m \approx 0.5$, что заметно меньше, чем следует из моделей АЭХ в ферромагнитных металлах [5] ($m = 1$ при асимметричном рассеянии, либо $m = 2$ в случае боковых прыжков).

Тот факт, что в диэлектрической области сохраняются и знак эффекта Холла, и пропорциональность между $\rho_h(H)$ и $M(H)$, означает, что в нашем случае эффект Холла является аномальным. Вместе с тем гигантская величина R_s , а также появляющееся в диэлектрической фазе заметное различие в температурной зависимости холловского и продольного сопротивлений указывают на определяющую роль туннельного характера проводимости и, как следствие, на качественное изменение ме-

²⁾ Калибровка относительных магнитооптических измерений проводилась "сшивкой" с результатами абсолютных СКВИДовских измерений в полях ≈ 5 Тл.

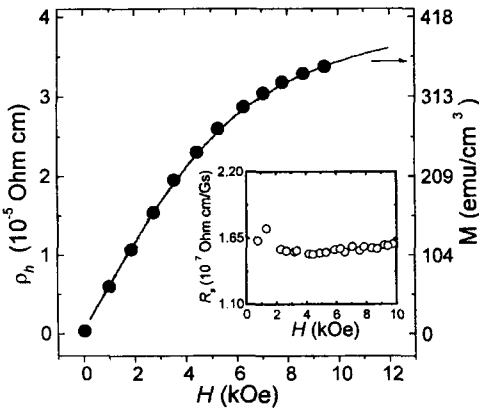


Рис.3. Магнитопольные зависимости холловского сопротивления ρ_h (●) и намагниченности M (сплошная линия) при $T = 300$ К. На вставке – магнитопольная зависимость аномального коэффициента Холла R_h при $T = 77$ К

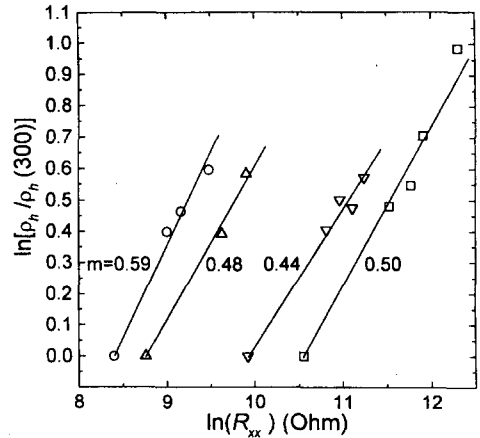


Рис.4. Параметрические зависимости $\rho_h(R_{xx})$ для диэлектрических образцов, температурные зависимости проводимости которых приведены на рис.1. Параметр – температура, изменяющаяся в интервале $T = 77 - 300$ К

ханизма возникновения эффекта Холла. Мы полагаем, что эффект Холла связан с интерференцией амплитуд туннельных переходов в совокупности из трех и более гранул, однако происходит не под действием магнитной индукции B , как в случае полупроводников с прыжковым режимом проводимости, а под действием намагниченности в условиях СОВ. Общий подход к рассмотрению эффекта Холла, развитый в [6], при этом остается в силе с той лишь разницей, что в нашем случае необходимо учесть разброс гранул по размерам. Данное обстоятельство, однако, может существенным образом изменить поведение холловского сопротивления в зависимости от температуры. Поясним это на простом примере обычного эффекта Холла. Обобщение на случай АЭХ не составляет труда, если следовать формализму, предложенному в [13], и учесть, что обычный и аномальный эффекты Холла аддитивным образом определяют холловское сопротивление (см. (1)).

В [6] показано, что для описания эффекта Холла необходимо рассматривать конфигурацию из трех центров (в нашем случае – из трех гранул). Оказывается, что линейная по магнитному полю добавка к вероятности туннелирования электрона между двумя центрами ($i \rightarrow j$) появляется только вследствие интерференционных эффектов, связанных с учетом двухстадийного туннельного перехода через третий центр ($i \rightarrow p \rightarrow j$). Усреднение по возможным "треугольным" конфигурациям показывает, что в ненулевом электрическом поле появляется холловский ток $\mathbf{j}_H = [\mathbf{E} \times \mathbf{h}]/\rho_h$, где $\mathbf{h} = \mathbf{B}/B$ – единичный вектор в направлении магнитного поля.

В [6] также показано, что основной вклад в холловскую проводимость вносят треугольные конфигурации центров (гранул) в виде равностороннего треугольника. По аналогии с [11] можно полагать, что при большом разбросе размеров гранул в переносе холловского тока участвуют лишь гранулы примерно одинакового (оптимального) размера a_H . Тогда важны лишь треугольные конфигурации с определенной длиной стороны l , равной по порядку величины среднему расстоянию между гранулами с размерами, близкими к a_H . В этом приближении холловское сопротивление ρ_h мож-

но представить в виде [14]

$$\rho_h \propto \frac{\rho_{ip}\rho_{pj}\rho_{ji}}{\rho_{ip} + \rho_{pj} + \rho_{ji}} W_{ipj}, \quad (3)$$

где

$$\rho_{ip} \propto \exp(2l_H/\lambda + w_H/kT) \quad (4)$$

– сопротивление туннельного перехода $i \rightarrow p$, $W_{ipj} \propto \exp(-3l_H/\lambda - w_H/kT)$ – амплитуда интерференции в единичном магнитном поле, $w_H = (e^2/\epsilon a_H)[1 - (x/x_c)^{1/3}]$ – энергия активации электронного перехода между двумя первоначально нейтральными гранулами [11]. Таким образом,

$$\rho_H \propto \exp(l_H/\lambda + w_H/kT). \quad (5)$$

Рассмотрение системы с широким разбросом размеров гранул показывает [11], что в случае, когда импеданс отдельного туннельного перехода выражается соотношением (4), температурная зависимость сопротивления нанокompозита описывается "законом $1/2$ " с характерной температурой $T_0 \propto \lambda^{-3/2}$. Температурная зависимость холловского сопротивления описывается тем же законом:

$$\rho_H \propto \exp[(T_H/T)^{1/2}], \quad (6)$$

в котором, однако, характерную температуру следует "исправить" в соответствии с различием между соотношениями (4), (5): $T_H = 2^{-3/2}T_0 \approx T_0/3$. Это приводит к следующему скейлинговому соотношению: $\rho_H \propto \rho_{xx}^m$; $m \approx 0.6$, которое согласуется с экспериментально найденным (см. рис.4).

Таким образом, в работе экспериментально исследован аномальный эффект Холла в диэлектрической фазе магнитного нанокompозита с туннельной проводимостью и предложены качественные соображения, объясняющие его природу. Подобие магнитопольевых зависимостей эффекта Холла и намагниченности доказывает аномальную природу эффекта, а вид его температурной зависимости – определяющую роль туннельного механизма.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 99-02-16955 и 98-02-17628) и российско-французского фонда PICS.

-
1. A.Milner, A.Gerber, B.Groisman et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 475 (1996).
 2. S.Mitani, S.Takahashi, K.Takanashi et al., Phys. Rev. Lett., **81**, 2799 (1998).
 3. A.B.Pakhomov, and X.Yan, Sol. State Commun. **99**, 139 (1996).
 4. A.B.Pakhomov, X.Yan, N.Wang et al., Physica **A241**, 344 (1997).
 5. А.В.Ведяев, А.Б.Грановский, О.А.Котельникова, *Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах*, М.: Изд-во МГУ, 1992.
 6. T.Holstein, Phys. Rev. **124**, 1329 (1961).
 7. R.Nemeth and V.Muhlshlegel, Sol. St. Comm. **66**, 999 (1988); Ю.М.Гальперин, Е.П.Герман, В.Г.Карпов, ЖЭТФ **99**, 343 (1992).
 8. Б.А.Аронзон, А.Е.Варфоломеев, Д.Ю.Ковалев и др., ФТТ **41**, 6 (1999).
 9. С.А.Гуревич, Т.А.Зарайская, С.Г.Конников и др., ФТТ **39**, 10 (1997).
 10. J.L.Gittleman, Y.Goldstein, and S.Bozovski, Phys. Rev. **B5**, 3609 (1972).
 11. Е.З.Мейлихов, ЖЭТФ **115**, 1484 (1999).
 12. *Handbook of Physical Quantities*, Eds. I.S.Grignoriev and E.Z.Meilikhov, CRC Press, Boca Raton, New York, London, Tokyo, 1997, p.902.
 13. А.В.Ведяев, А.Б.Грановский, ФТТ **28**, 2310 (1986).
 14. M.Gruenewald, H.Mueller, P.Thomas, and D.Wuertz, Sol. St. Comm. **38**, 1011 (1981); M.Nissim, and R.L.Rosenbaum, Phys. Rev. **B40**, 10629 (1989).