

ТУННЕЛЬНОЕ МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ И ЭФФЕКТ ХОЛЛА ГРАНУЛИРОВАННЫХ ФЕРРОМАГНИТНЫХ МЕТАЛЛОВ

Е.З.Мейлихов

Институт молекулярной физики Российского научного центра "Курчатовский институт",
123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 4 марта 1999 г.

После переработки 22 марта 1999 г.

Показано, что для описания туннельного магнитосопротивления и эффекта Холла гранулированных ферромагнитных металлов необходимо учитывать два обстоятельства: 1) разброс размеров металлических гранул и 2) переколяционный характер туннельной проводимости системы, определяющий оптимальный (зависящий от температуры) размер гранул, через которые осуществляется перенос тока. Это приводит к усложнению зависимостей магнитосопротивления и холловского сопротивления системы от ее намагниченности и температуры.

PACS: 72.15.Gd, 75.70.Pa

Гранулированные металлы (металлодиэлектрические нанокомпозиты) – совокупность малых (размером $a = 1 - 100$ нм) металлических включений в диэлектрической матрице – обладают рядом уникальных свойств, зависящих от объемного содержания x проводящей фазы [1–3]. Существует некоторое критическое значение x_c , такое, что при $x > x_c$ материал имеет металлические свойства, а при $x < x_c$ представляет собой диэлектрик с термически активируемой проводимостью. Установлено, что она связана с туннельными переходами носителей заряда между гранулами, и в этом отношении ее механизм близок к известному механизму прыжковой проводимости по примесям в легированных полупроводниках [2]. В случае, когда материал гранул – ферромагнитный металл, такая туннельная проводимость существенно зависит от магнитного поля. Физическая причина этой сильной зависимости состоит в следующем. Вероятность электронного туннелирования через диэлектрическую прослойку между двумя ферромагнитными металлами (FM/I/FM-переход) определяется взаимной ориентацией магнитных моментов металлических электродов. Туннельный контактанс FM/I/FM-перехода равен $G \propto (1 + P^2 \cos\theta)e^{-\xi}$, где $e^{-\xi}$ – стандартная туннельная экспонента, θ – угол между направлениями магнитных моментов в “берегах” перехода, зависящий от внешнего магнитного поля, $P = (D_\uparrow - D_\downarrow)/(D_\uparrow + D_\downarrow)$ – не зависящая от магнитного поля спиновая поляризация электронов проводимости ферромагнетика (D_\uparrow, D_\downarrow – плотности состояний на уровне Ферми для электронов со спинами \uparrow, \downarrow). Множитель $\cos\theta$ возникает за счет спинорного преобразования волновой функции электрона, изменяющего направление своего спина при переходе из одного ферромагнетика в другой [4].

Магнитное поле влияет лишь на предэкспоненциальный множитель в выражении для контактанса туннельного перехода. Это означает, что переколяционная модель проводимости, обычно используемая для описания свойств немагнитных нанокомпозитов, пригодна и в данном случае. В частности, необходимо учитывать то обстоятельство, что при большом разбросе размеров гранул нанокомпозита в проводимости эффективно участвует лишь незначительная их часть, а именно, гранулы так

называемого оптимального размера a_{opt} , который уменьшается с ростом температуры [5]. Ориентация магнитного момента ферромагнитных гранул в магнитном поле определяется величиной этого момента, которая непосредственно связана с размером гранул. Поэтому в отличие от намагниченности системы, определяемой всеми составляющими ее магнитными гранулами, проводимость нанокомпозита определяется только гранулами с "оптимальным" магнитным моментом μ_{opt} , существенно зависящим от температуры. В работах, посвященных исследованию и описанию свойств ферромагнитных гранулярных металлов с туннельной проводимостью это обстоятельство игнорируется. Цель настоящей работы – показать, что адекватное описание свойств магнитных нанокомпозитов возможно лишь при учете указанных обстоятельств.

В силу малых размеров ферромагнитных гранул они однодомены и находятся в суперпарамагнитном состоянии. Последнее означает, что рассматриваемая совокупность гранул ведет себя по отношению к воздействию внешнего магнитного поля H и температуры T подобно парамагнитному газу атомов. Отличие лишь в том, что в газе изменяется ориентация самих атомов вместе с их магнитными моментами, а в неподвижных однодоменных гранулах поворачивается только их магнитный момент [6]. В результате средняя взаимная ориентация магнитных моментов соседних гранул, характеризуемая величиной $\langle \cos\theta \rangle$, а значит, и средний межгранулярный контактанс $\langle G \rangle$ зависят от внешнего магнитного поля. В этой модели вычисление проводимости нанокомпозита

$$\sigma(H, T) \propto \langle G \rangle \propto 1 + P^2 \langle \cos\theta \rangle \quad (1)$$

сводится лишь к установлению правильного способа усреднения $\langle \cos\theta \rangle$.

Ниже рассмотрим лишь ситуацию, когда взаимодействие, а значит, и корреляция направлений магнитных моментов соседних гранул несущественны. Учет такой корреляции (например, с помощью простой схемы, изложенной в [7]) позволяет убедиться, что все нижеследующие выводы в качественном отношении не меняются. Обозначим углы, которые составляют моменты двух соседних гранул 1, 2 с осями координат x, y, z , соответственно $\alpha_{1,2}, \beta_{1,2}, \gamma_{1,2}$. Тогда $\cos\theta = \cos\alpha_1\cos\alpha_2 + \cos\beta_1\cos\beta_2 + \cos\gamma_1\cos\gamma_2$. Если внешнее магнитное поле направлено по оси z , то углы $\alpha_{1,2}$ и $\beta_{1,2}$ (относительно осей x, y) принимают равновероятные значения в интервале $[0, 2\pi]$. Поэтому $\langle \cos\alpha_1\cos\alpha_2 \rangle = \langle \cos\beta_1\cos\beta_2 \rangle = 0$ и после усреднения получаем $\langle \cos\theta \rangle = \langle \cos\gamma_1\cos\gamma_2 \rangle$, где теперь γ_1, γ_2 – углы между магнитными моментами гранул и внешним магнитным полем. В отсутствие корреляции направлений магнитных моментов соседних гранул значения углов γ_1, γ_2 независимы, и потому $\langle \cos\theta \rangle = \langle \cos\gamma \rangle^2$.

Определив относительное магнитосопротивление системы как $MR(H, T) = [\sigma(0, T) - \sigma(H, T)]/\sigma(0, T)$, с учетом (1) получим

$$MR(H, T) = -P^2 \langle \cos\gamma \rangle^2. \quad (2)$$

Таким образом задача сводится к усреднению по углам γ между внешним магнитным полем и магнитными моментами тех гранул, которые реально вносят вклад в проводимость системы.

Простейший случай – это усреднение по всем гранулам [8]. Тогда в предположении, что все они – сферы одинакового радиуса a_0 и потому обладают одинаковыми магнитными моментами $\mu_0 = (4\pi/3)a_0^3 I_s$ (I_s – намагниченность насыщения

материала гранул), можно использовать известную формулу Ланжевена для полного магнитного момента системы:

$$M(H, T) = N\mu_0 \langle \cos \gamma \rangle = N\mu_0 L(m_0 H/kT), \quad L(x) = \coth(x) - 1/x \quad (3)$$

(N – полное число гранул). Тогда

$$\text{MR}(H, T) = -P^2 L^2(\mu_0 H/kT) = -P^2 [M(H, T)/M_s]^2, \quad (4)$$

где $M_s = N\mu_0$ – магнитный момент насыщения.

Однако практически всегда разброс размеров гранул, а значит, и их магнитных моментов достаточно велик. Если по-прежнему считать гранулы сферическими, то этот разброс можно описать с помощью функции $f(a)$ распределения их радиусов a . При этом гранулы обладают различными магнитными моментами $\mu = (4\pi/3)a^3 I_s$, разброс которых характеризуется функцией распределения $\varphi(\mu) = f[a(\mu)](\partial a/\partial \mu) = = (36\pi I_s)^{-1/3} \mu^{-2/3} f[a(\mu)]$. В этом случае полный магнитный момент системы

$$M(H, T) = N \int_0^\infty \mu L(\mu H/kT) \varphi(\mu) d\mu, \quad (5)$$

как и прежде, определяется усреднением по всем гранулам. Однако при вычислении проводимости системы (и ее магнитосопротивления) надо учитывать лишь те гранулы, которые реально вносят вклад в проводимость. Как показано в [5], с этой точки зрения актуальны лишь гранулы с размерами, близкими к “оптимальному”: $a \approx a_{opt} \propto T^{-1/2}$. Тогда из (2) получаем

$$\text{MR}(H, T) = -P^2 L^2[\mu_{opt}(T)H/kT], \quad (6)$$

где $\mu_{opt}(T) = (4\pi/3)a_{opt}^3(T)I_s$. При этом прямая пропорциональность $\text{MR}(H, T) \propto \propto [M(H, T)]^2$, характерная для системы с гранулами одного размера, естественно, не имеет места.

Модель, использованная в [5], в полной мере применима для систем, далеких от области переключения перехода. Поэтому теоретическую зависимость (6) надо сопоставлять с экспериментами для систем с $(x_c - x) \gtrsim 0.1$. Такое сопоставление, кроме того, требует знания величины $\mu_{opt}(T)$ хотя бы при одном значении температуры, например, при комнатной температуре $T = 300$ К. Если величина $\mu_{opt} \equiv \mu_{300}$ известна, то $\mu_{opt}(T) = \mu_{300}(300/T)^{3/2}$. Таким образом, величину μ_{300} можно использовать в качестве подгоночного параметра.

В работе [9] исследовалось магнитосопротивление систем $\text{Fe}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с $x < 0.45$. На рис. 1 приведена экспериментальная температурная зависимость $\text{MR}(T)$ для системы с $x = 0.26$. Показанная там же теоретическая зависимость (6) хорошо согласуется с экспериментом, если принять ¹⁾ $\mu_{300} = 1450 \mu_B$, $P = 0.2$. По поводу найденной величины подгоночного параметра μ_{300} необходимо сказать следующее. Поскольку с ростом температуры μ_{opt} падает, следует ожидать, что $\mu_{opt} < \langle \mu \rangle = M_s/N$, так как в величину $\langle \mu \rangle$ существенный вклад вносят гранулы с большими значениями μ , которые (в силу их большой удаленности друг от друга) неэффективны с точки зрения туннельной проводимости [5]. Аппроксимируя магнитополевую зависимость

¹⁾ Приведенное значение P можно сравнить с известным значением $P \approx 0.3$ для Co [8, 10].

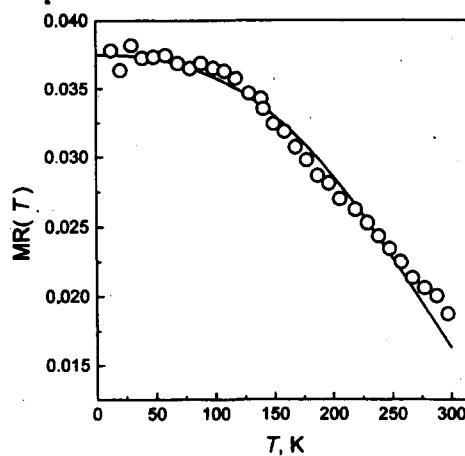


Рис.1 Температурная зависимость относительного магнитосопротивления $MR(T, H = 9 \text{ кЭ})$ для системы $\text{Fe}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с $x = 0.26$. Точки – эксперимент [8]. Кривая – расчет по формуле (6) со следующими значениями параметров: $P = 0.2$, $\mu_{300} = 1450 \mu_B$

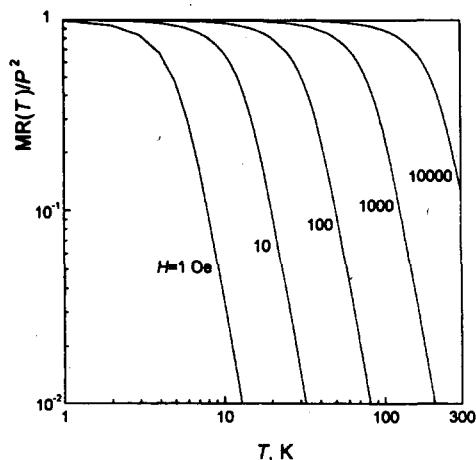


Рис.2 Температурные зависимости нормированного относительного магнитосопротивления $MR(T)/P^2$ в различных магнитных полях, рассчитанные по формуле (6) для $\mu_{300} = 1450 \mu_B$

намагниченности системы $\text{Fe}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с $x = 0.26$ суммой двух функций Ланжевена, авторы [9] показывают, что она содержит гранулы Fe двух типов: большие, с магнитным моментом $\mu_L = 12500 \mu_B$, и малые, с магнитным моментом $\mu_S = 2620 \mu_B$, причем концентрация малых гранул на порядок выше, чем больших. Оставляя пока в стороне вопрос о правомерности такого анализа (см. ниже), заключаем, что подгоночное значение μ_{300} действительно меньше приведенных значений μ_L , μ_S .

Учет температурной зависимости размера актуальных гранул приводит к изменению (по сравнению с системой одинаковых гранул) температурной зависимости магнитосопротивления, особенно существенному в области малых магнитных полей. В последнем случае из (4), (6) следует (если учесть, что $\mu_{opt} \propto T^{-3/2}$)

$$MR(H \rightarrow 0) \propto \begin{cases} T^{-2}, & \text{гранулы одного размера,} \\ T^{-5}, & \text{гранулы с большим разбросом размеров.} \end{cases} \quad (7)$$

На рис. 2 представлены зависимости $MR(T)$ в различных магнитных полях.

Обсудим теперь, насколько корректна часто применяемая (см., например, [7, 9, 11]) процедура восстановления функции распределения $\varphi(\mu)$ по экспериментально измеряемой зависимости $M(H, T)$. Математически задача сводится к решению интегрального уравнения (5) и принадлежит к классу так называемых некорректных задач [12]. Это означает, что в отсутствие априорной информации о виде функции $\varphi(\mu)$ (а ее практически никогда нет) и ввиду приближенного характера экспериментальных данных можно найти множество приближенных решений этого уравнения, радикально различающихся своими свойствами. Авторы, аппроксимирующие зависимость $M(H)$ суммой нескольких функций Ланжевена, исходят из ничем не подкрепленного утверждения, что система состоит из двух [9, 11] или четырех [7] четко определенных фракций, а не описывается широкой и непрерывной функцией распределения $\varphi(\mu)$. То, что это сомнительно, видно хотя бы из сравнения

результатов подобной аппроксимации и ТЕМ-фотографий исследуемых систем. Так, процедура аппроксимации в работе [9] “показывает”, что система, якобы, состоит из гранул двух размеров: 15 и 25 Å, в то время как на фотографии видны частицы нерегулярной формы с любыми размерами, меньшими приблизительно 50 Å.

Для того чтобы проиллюстрировать, насколько сомнительны получаемые с помощью такой процедуры результаты, мы рассчитали с помощью (5) магнитополевую зависимость намагниченности для использованной в [11] функции распределения:

$$\varphi(\mu) = [1/\sqrt{2\pi}\sigma\mu] \exp[-\ln^2(\mu/\mu_0)/2\sigma^2]. \quad (8)$$

На рис. 3 эта зависимость изображена отрезками, длина которых имитирует погрешность измерений, равную 3%. Там же приведены кривые, являющиеся результатом описанной процедуры аппроксимации для нескольких наборов параметров гранул. Видно, что в пределах точности “эксперимента” все эти наборы (несмотря на их существенное различие) неразличимы. Это и свидетельствует о некорректности такой процедуры и многих выводов, делающихся на ее основе.

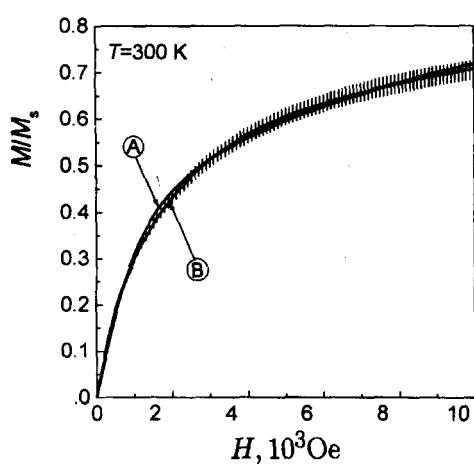


Рис.3. Рассчитанная по формуле (5) магнитополевая зависимость намагниченности для системы гранул, магнитные моменты которых распределены по закону (8) с параметрами $\mu_{300} = 250 \mu_B$, $\sigma = 1.16$ при $T = 300$ К. Длина вертикальных отрезков имитирует относительную погрешность 3%. Кривые – результат аппроксимации результатов численного эксперимента суммой двух (A), а также трех и четырех (B) взвешенных функций Ланжевена: $M/M_s = \sum_i \eta_i L(\mu_i H/kT)$, где $\eta_i = n_i \mu_i / \sum_i n_i \mu_i$, n_i – относительная доля и концентрация гранул i -го сорта, соответственно. Подгоночные наборы параметров (для доминирующих фракций, состоящих из гранул наименьшего размера): A – $\mu_1 = 170 \mu_B$, $\eta_1 = 0.92$, $\mu_2 = 2400 \mu_B$, $\eta_2 = 0.08$ (система из двух фракций); B – $\mu_1 = 100 \mu_B$, $\eta_1 = 0.87$, $\mu_2 = 1000 \mu_B$, $\eta_2 \approx 0.13$ (система из трех фракций); $\mu_1 = 65 \mu_B$, $\eta_1 = 0.85$, $\mu_2 = 610 \mu_B$, $\eta_2 \approx 0.13$ (система из четырех фракций – первый вариант); $\mu_1 = 33 \mu_B$, $\eta_1 = 0.78$, $\mu_2 = 330 \mu_B$, $\eta_2 \approx 0.22$ (система из четырех фракций – второй вариант)

Перейдем теперь к рассмотрению эффекта Холла в рассматриваемой системе. Известно, что в объемных ферромагнетиках две составляющие вносят вклад в холловское поле [13]:

$$\mathbf{E}^{(H)} = [R_0 \mathbf{B} + 4\pi R_s \mathbf{I}] \times \mathbf{j}. \quad (9)$$

Один из них соответствует нормальному эффекту Холла, который связан с силой Лоренца и пропорционален магнитной индукции B (R_0 – нормальный коэффициент Холла). Другой, соответствующий так называемому аномальному эффекту Холла, пропорционален намагниченности I ферромагнетика (R_s – аномальный коэффициент Холла). Он связан со спин-орбитальным взаимодействием электронов проводимости с рассеивателями (фононы, магнитные неоднородности), которое приводит к их “асимметричному рассеянию” (skew scattering) или “боковому смещению” (side-jump) [14].

Туннельный ток протекает через гранулы оптимального размера a_{opt} , отделенные друг от друга средним расстоянием ℓ . Пусть этот ток параллелен оси x , а внешнее магнитное поле, как и прежде, направлено вдоль оси z . Так как обычно $R_s \gg R_0$, то холловское электрическое поле, возникающее в грануле, есть $e \sim 4\pi R_s I \times (i/a_{opt}^2)$, где $|i| \sim |j|\ell^2$ – ток в отдельной грануле, $|j|$ – средняя плотность тока. Холловское поле в образце $E^{(H)}$, направленное вдоль оси y , связано простым соотношением $E^{(H)} \sim \langle e(a_{opt}/\ell) \rangle$ с холловскими полями e в отдельных гранулах (здесь усреднение проводится по всем гранулам оптимального размера). Поэтому

$$E^{(H)} \sim (4\pi R_s / \ell a_{opt}) (I \times i), \quad (10)$$

что после усреднения дает $E_y^{(H)} \sim (4\pi R_s / \ell a_{opt}) \langle I_z \rangle \langle i_x \rangle = 4\pi R_s I_s \langle \cos \gamma \rangle (\ell / a_{opt}) j$. При этом мы считали все частицы однодоменными, а значит, $|I| = I_s$, и, кроме того, учли, что $\langle i_x \rangle = j\ell^2$. В отсутствие взаимодействия между гранулами получаем отсюда для холловского сопротивления

$$\rho_H(H, T) \equiv E_y^{(H)} / j_x = 4\pi R_s I_s L [\mu_{opt}(T) H / kT] (\ell / a_{opt}). \quad (11)$$

Из соотношений (6), (11) для относительного магнитосопротивления и холловского сопротивления следует

$$|MR| = \rho_H^2 [(P / 4\pi R_s I_s) (a_{opt} / \ell)]^2. \quad (12)$$

При постоянной температуре (и меняющемся магнитном поле) выражение в правой части (12) сохраняет постоянное значение, так что (в случае правильности рассмотренной модели) эксперимент должен давать простую зависимость $|MR| \propto \rho_H^2$, позволяющую найти аномальный коэффициент Холла. Эксперименты [15] по измерению магнитосопротивления и эффекта Холла в системах $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ подтверждают этот вывод.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 99-02-16955-а и 98-02-17412-а), а также программы РІСС-РФФІ (грант 98-02-22037).

-
1. Тематический выпуск журнала Phil. Mag. **B65**, (1992).
 2. C.J.Adkins, in: *Metal-Insulator Transitions Revisited*, Eds. P.P.Edwards and C.N.R. Rao, Taylor & Francis, 1995; J. Phys.: Condens. Matter **1**, 1253, (1989).
 3. P.Sheng, Phil. Mag. **B65**, 357 (1992).
 4. J.C.Slonczewski, Phys. Rev. **B39**, 6995 (1989).
 5. Е.З.Мейлихов, ЖЭТФ **115**, 624 (1999).
 6. С.В.Вонсовский, *Магнетизм*, М.: Наука, 1971.
 7. P.Allia, M.Knobel, P.Tiberto, and F.Vinai, Phys. Rev. **B52**, 15398 (1995).
 8. J.Inoue and S.Maekawa, Phys. Rev. **B53**, R11927 (1996).
 9. S.Honda, T.Okada, M.Nawate, and M.Tokumoto, Phys. Rev. **B56**, 14566 (1997).
 10. C.H.Shang, J.Nowak, R.Jansen, and J.S.Moodera, Phys. Rev. **B58**, R2917 (1998).
 11. E.F.Ferrari, F.C.S. da Silva, and M.Knobel, Phys. Rev. **B56**, 6086 (1997).
 12. А.Н.Тихонов, В.Я.Арсенин, *Методы решения некорректных задач*, М.: Наука, 1979.
 13. А.В.Веднев, А.Б.Грановский, О.А.Котельникова, *Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах*, изд. МГУ, 1992.
 14. J.M.Luttinger, Phys. Rev. **112**, 739 (1958).
 15. В.В.Рыльков, Д.Ю.Ковалев (частное сообщение).