ЖЭТФ, 2001, том 119, вып. 5, стр. 937–941

МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ ГРАНУЛЯРНОГО ФЕРРОМАГНИТНОГО МЕТАЛЛА С НЕСФЕРИЧЕСКИМИ ГРАНУЛАМИ

Е. З. Мейлихов*

Российский научный центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

Б. Раке**, Х. Ракото**

Laboratoire de Physique de la Matiere Condensee de Toulouse
31077 Toulouse, France

Поступила в редакцию 31 октября 2000 г.

Экспериментально установлено, что магнитосопротивление нанокомпозита $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ ($x \approx 0.6$) есть логарифмическая функция сильного магнитного поля. Такая полевая зависимость не согласуется с известной теорией гигантского магнитосопротивления ферромагнитных нанокомпозитов. Предлагается модель, которая объясняет необычное поведение магнитосопротивления несферичностью гранул нанокомпозита и широким разнообразием их форм. Экспериментальные результаты согласуются с выводами и предсказаниями этой модели.

PACS: 75.50.Kj, 75.50.Tt, 75.60.Ej

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящей работе исследуется гигантское магнитосопротивление нанокомпозита $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ с $x \approx 0.6$ (что соответствует металлической стороне перколяционного перехода металл–диэлектрик), который представляет собой гранулярный ферромагнитный металл в диэлектрической матрице. Наши эксперименты показывают, что в достаточно сильных магнитных полях сопротивление такой системы логарифмически зависит от магнитного поля. Такая зависимость не согласуется с известной теорией гигантского магнитосопротивления ферромагнитных нанокомпозитов [1, 2]. Мы связываем это расхождение с тем, что «традиционная» теория относится к системам, состоящим из сферических гранул, в то время как реальные нанокомпозиты представляют собой, как правило, систему несферических гранул. Более того, это — гранулы с различной степенью несферичности: от сильно вытянутых до сильно сплющенных. В работе гигантское магнитосопротивление таких систем исследуется в рамках простой модели, которая связывает необычную квазилогарифмическую полевую зависимость сопротивления с широким разбросом форм несферических гранул нанокомпозита.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Изучались тонкие пленки $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ с $x \approx 0.6$ толщиной около 0.4 мкм. Они получались методом ионного распыления мозаичной мишени, состоящей из «таблеток» Fe и SiO_2, в вакууме. Объемное содержание x железа в пленке контролировалось с помощью рентгеновского микроанализа. Измеренный диаметр Fe-гранул пленки варьировался в пределах 2–20 нм.

Относительное магнитосопротивление $\Delta R/R$ пленки (R — ее сопротивление при данной температуре в нулевом магнитном поле, ΔR — изменение сопротивления в поле B) измерялось в диапазоне температур 4.2–300 К в «длинных» (длительностью около 0.1 с) импульсных магнитных полях до 20 Тл.

На рис. 1 представлены экспериментальные зави-

*E-mail: meilikhov@imp.kiae.ru
**B. Raquet, H. Rakoto.

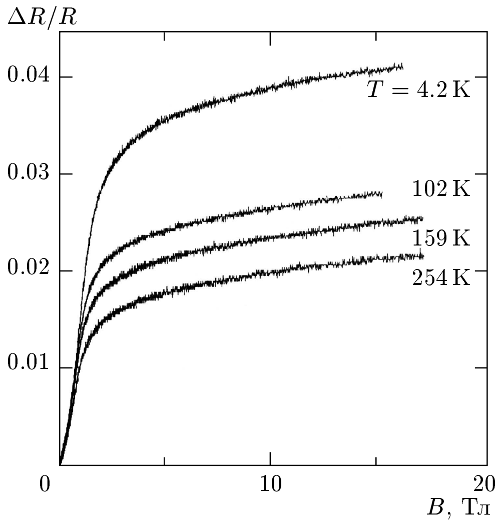

Рис. 1. Полевые зависимости магнитосопротивления нанокомпозита $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ ($x \approx 0.6$) при различных температурах

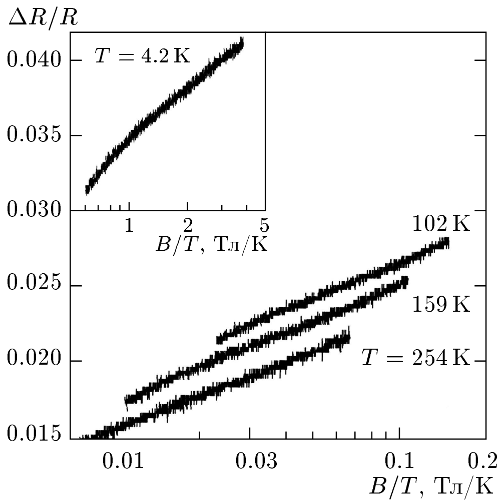

Рис. 2. Высокополевые зависимости магнитосопротивления нанокомпозита $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ ($x \approx 0.6$) при различных температурах в логарифмическом масштабе

симости магнитосопротивления нанокомпозита при различных температурах, а на рис. 2 высокополевые части этих зависимостей представлены в логарифмическом масштабе как функции «эффективного» магнитного поля B/T. Видно, что в области высоких полей сопротивление логарифмически зависит от магнитного поля.

3. МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ НАНОКОМПОЗИТА С НЕСФЕРИЧЕСКИМИ ГРАНУЛАМИ

Проводимость гранулярных металлов (нанокомпозитов) и их гигантское магнитосопротивление (в случае ферромагнитных металлов) определяются туннелированием электронов между гранулами [1, 2]. Однако в реальной системе, состоящей из гранул различного размера, наиболее существенный вклад в проводимость дают лишь гранулы, размер которых близок к «оптимальному» [3, 4]. Для нанокомпозита, состоящего из сферических гранул, такой оптимальный размер определяется конкуренцией между (присущей реальным системам) повышенной концентрацией гранул малого размера и пониженной вследствие кулоновских эффектов степенью их ионизации. Оптимальный размер гранул выражается соотношением [3]

$$a_{opt}(T) \approx a_0 \left(\frac{x}{4\pi}\right)^{1/2} \frac{\lambda}{a_0} \left(\frac{T}{T_0}\right)^{-5/9}, \qquad (1)$$

где $kT_0 \approx (e^2/\varepsilon a_0)(a_0/\lambda)^{3/2} x^{-1/2}[1-(x/x_c)^{1/3}]$, a_0 — средний размер гранул, λ — электронная длина волны в диэлектрической фазе, ε — диэлектрическая постоянная, x — объемное содержание металлической фазы и x_c — перколяционный порог. Кондактанс $G(T)$ системы определяется «оптимальным кластером», состоящим из гранул оптимального размера $a_{opt}(T)$ и перестраивающимся при изменении температуры.

Изменение сопротивления рассматриваемой системы в магнитном поле B связано с магнитополевой зависимостью вероятности туннельных переходов между спонтанно намагниченными однодоменными (в силу своих малых размеров) гранулами. Относительное магнитосопротивление $\Delta R(B,T)/R = [G(0,T) - G(B,T)]/G(0,T)$ равно [4]

$$\frac{\Delta R(B,T)}{R} = P^2 \langle \cos\gamma \rangle^2, \qquad (2)$$

где P — поляризация электронных спинов в ферромагнитной грануле, γ — углы между внешним магнитным полем и магнитными моментами гранул. Усреднение проводится по гранулам, составляющим оптимальный кластер. Таким образом, расчет магнитосопротивления сводится к вычислению усредненного (по этому кластеру) значения $\langle \cos\gamma \rangle$.

В реальной системе, однако, гранулы, вообще говоря, несферичны. Это означает, что не все значения углов γ_1 одинаково вероятны и усредненное (по времени) значение $\overline{\cos\gamma_1}$ для какой-либо несферической гранулы определяется ее магнитной (или геометрической) анизотропией и внешним магнитным полем [5]. Для эллипсоидальной гранулы с большим (по сравнению с магнетоном Бора) магнитным моментом

$$\overline{\cos\gamma_1} = \int \exp\left(-\frac{W_A+W_B}{kT}\right) \times \\ \times \cos\gamma_1 d\Omega \Bigg/ \int \exp\left(-\frac{W_A+W_B}{kT}\right) d\Omega, \quad (3)$$

где $d\Omega = \sin\gamma_1 d\gamma_1 d\phi$ — телесный угол, ϕ — азимутальный угол магнитного момента гранулы ($\cos\phi = [\cos\theta - \cos\gamma_1\cos\beta]/\sin\gamma_1\sin\beta$, θ и β — соответственно углы между большой осью гранулы и направлениями ее магнитного момента и внешнего магнитного поля). В (3) $W_A = (1/2)VI_s^2\sin^2\theta$ — энергия магнитной анизотропии, явно не зависящая от магнитного поля, $W_B = -I_sVB\cos\gamma_1$ — зеемановская энергия, зависящая только от угла γ_1, I_s — намагниченность насыщения материала гранул. В сильных магнитных полях $|W_B| \gg W_A$ и, следовательно,

$$\overline{\cos\gamma_1} = \operatorname{cth} h - 1/h \equiv L(h), \quad (4)$$

где $h = I_sVB/kT$. Это соответствует известной модели Ланжевена.

Если бы оптимальный кластер состоял из сферических гранул оптимального размера a_{opt}, то фигурирующий в (4) объем V был бы одинаков для всех гранул и равен $V = V_{opt} = (4\pi/3)a_{opt}^3(T) \propto T^{-5/3}$. В этом случае $\langle\cos\gamma\rangle = \overline{\cos\gamma_1} = L(h_{opt})$, где $h_{opt} = I_sBV_{opt}/kT \propto T^{-8/3}$. Ясно, что даже в этом случае температурная зависимость магнитного момента оптимального кластера (который пропорционален $\langle\cos\gamma\rangle$) не описывается ланжевеновской моделью (в которой $h \propto 1/T$).

В системе, состоящей из несферических (эллипсоидальных) гранул, ситуация еще более усложняется. Фактически оптимальный размер гранул определяется двумя обстоятельствами [3]: 1) зависимостью концентрации заряженных гранул от их емкости C (которая для сферических гранул совпадает с их характерным размером — радиусом) и 2) зависимостью среднего (туннельного) расстояния между гранулами с одинаковой емкостью C от их концентрации. Гранула в виде эллипсоида вращения имеет два характерных размера — a и b — представляющих соответственно длины ее длинной и короткой осей. Какой из этих двух размеров существен с точки зрения рассматриваемой проблемы? Известно, что емкость эллипсоидальной гранулы с бóльшим размером a слабо зависит от ее меньшего размера b: для вытянутого эллипсоида вращения

$$C = \frac{(a^2-b^2)^{1/2}}{\operatorname{Arch}(a/b)} \approx \frac{a}{\ln(2a/b)},$$

а для сплющенного —

$$C = \frac{(a^2-b^2)^{1/2}}{\arccos(a/b)}$$

(т. е. $2/\pi < C/a < 1$) [6]. Это означает, что единственным существенным размером гранул является их больший размер, и все гранулы с бóльшим размером a, близким к a_{opt}, являются оптимальными. Поэтому оптимальный кластер состоит из гранул, объемы которых заключены в интервале $V_{min} < V < V_{opt}$, где $V_{opt} = (4\pi/3)a_{opt}^3$ и $V_{min} = (b_{min}/a_{opt})^2V_{opt}$ (для вытянутых эллипсоидов) или $V_{min} = (b_{min}/a_{opt})V_{opt}$ (для сплющенных эллипсоидов), b_{min}/a_{opt} — минимальное (для данного нанокомпозита) значение отношения соответствующих размеров гранул, которое характеризует их максимальную вытянутость или сплющенность. Если $b_{min}/a_{opt} \sim 0.1$, то оптимальный кластер включает гранулы, объемы которых различаются приблизительно в 100 раз! В этом случае, естественно, $\langle\cos\gamma\rangle \neq \overline{\cos\gamma_1}$, и усреднение следует проводить по всем гранулам оптимального кластера. Пусть $f_b(b)$ — функция распределения меньших размеров гранул, а x_0 — объемная доля вытянутых гранул. Тогда

$$\langle\cos\gamma\rangle = \int\limits_{b=b_{min}}^{b=a_{opt}} \left\{(1-x_0)L\left(\frac{ab^2}{a_{opt}^3}h_{opt}\right) + \right. \\ \left. + x_0 L\left(\frac{a^2b}{a_{opt}^3}h_{opt}\right)\right\} f_b(b)db = F(h_{opt}), \\ F(h_{opt}) = \int\limits_{z_{min}}^{1} \left[(1-x_0)L(h_{opt}z^2) + \right. \\ \left. + x_0L(h_{opt}z)\right] f_z(z)dz, \quad (5)$$

где введена функция $f_z(z)$ распределения гранул по параметру $z \equiv b/a_{opt}$ ($0 < z < 1$, $z_{min} = b_{min}/a_{opt}$).

Функция распределения $f_z(z)$, скорее всего, зависит от метода получения нанокомпозита. Это в равной степени относится и к соотношению между числом вытянутых и сплющенных гранул, которое мы определили параметром x_0. В принципе соответствующую информацию можно получить с помощью электронно-микроскопического изучения рассматриваемой системы. Однако, как показывают вычисления (см. ниже), качественный вид магнитополевой зависимости сопротивления не критичен ни к

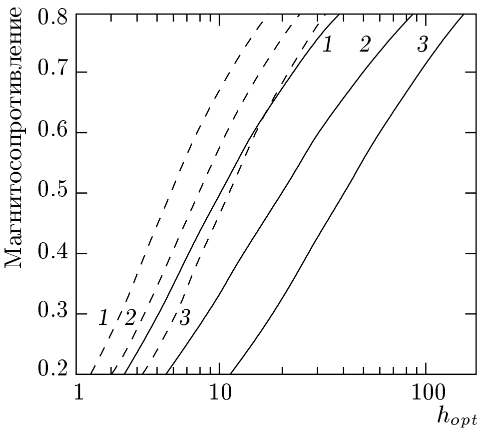

Рис. 3. Расчетные магнитополевые зависимости сопротивления гранулярного ферромагнитного металла с несферическими гранулами вытянутой (сплошные кривые, $x_0 = 0$) и сплющенной (штриховые кривые, $x_0 = 1$) форм. Функция распределения $f_z(z)$: *1* — линейно возрастающая, *2* — однородная, *3* — линейно убывающая

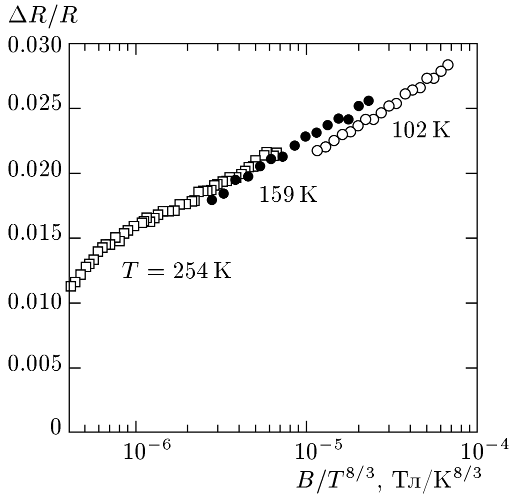

Рис. 4. Параметрические зависимости магнитосопротивления нанокомпозита $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ ($x \approx 0.6$) в области высоких полей

выбору функции распределения $f_z(z)$, ни к величинам параметров $z_{min} \ll 1$ и x_0. Поэтому в качестве простого приближения рассмотрим систему с однородной функцией распределения ($f_z(z) = \mathrm{const}$), состоящую только из вытянутых гранул ($x_0 = 0$), т. е. систему, в которой вытянутые эллипсоидальные гранулы любой формы — от сферической ($z = 1$) до иглообразной ($z = 0$) — встречаются с равной вероятностью. В расчетах принято $z_{min} = 0.1$.

Магнитополевая зависимость сопротивления такой системы, рассчитанная с помощью соотношения (5), представлена на рис. 3 (сплошная кривая *2*). Видно, что в широком диапазоне полей (в данном случае при $5 < h_{opt} < 50$) полевая зависимость сопротивления близка к логарифмической. Вычисления показывают (см. рис. 3), что характер этой зависимости качественно одинаков для различных функций $f_z(z)$ и значений x_0. Меняется лишь диапазон магнитных полей, в котором эта зависимость является квазилогарифмической.

Характерное эффективное поле для диапазона магнитных полей, в котором должна наблюдаться квазилогарифмическая полевая зависимость магнитосопротивления, $h_{opt} \sim 20$ (см. рис. 3, сплошная линия *2* для однородной функции распределения $f_z(z)$). Сравнивая эту величину со значением $B/T \approx 3 \cdot 10^{-2}$ Тл/К, соответствующим экспериментально определенному диапазону логарифмической полевой зависимости сопротивления при температурах $T \sim 100$–250 К (см. рис. 2), получаем оценку диаметра оптимальных гранул $2a_{opt} \sim 20$ нм (при этом намагниченность насыщения Fe-гранул принималась равной ее значению для объемного железа, $I_s \approx 0.2$ Тл). Это согласуется с данными электронно-микроскопического анализа изучаемых нанокомпозитов[1)].

Обсудим теперь температурную зависимость магнитосопротивления в области его логарифмической полевой зависимости. В рамках рассмотренной модели единственной причиной такой температурной зависимости является изменение большего размера гранул оптимального кластера: в соответствии с (1) $a_{opt}(T) \propto T^{-5/9}$. Это означает, что магнитосопротивление зависит только от комбинации параметров, определяющих величину $h_{opt} \propto B/T^{8/3}$. Иными словами, модель предсказывает наличие параметрической зависимости магнитосопротивления вида $\Delta R/R = \Delta R(B/T^{8/3})/R$, согласно которой любое значение относительного магнитосопротивления $\Delta R/R$ как функция параметра $B/T^{8/3}$ должно попадать на единую кривую. Представление экспериментальных данных в соответствующем виде (см. рис. 4) подтверждает этот теоретический вывод.

Мы показали, что модель нанокомпозита с несфе-

[1)] Согласно (1), $a_{opt}(T) \propto T^{-1/2}$ и, следовательно, расчетный оптимальный размер гранул при $T = 4.2$ К составляет $2a_{opt}(4.2\ \text{К}) \sim 100$ нм. Однако в реальной системе таких больших гранул нет. Это означает, что применять рассматриваемую модель при столь низких температурах некорректно.

рическими гранулами различной формы приводит к квазилогарифмической магнитополевой зависимости сопротивления такой системы в достаточно сильных магнитных полях. Это, очевидно, связано с большим разбросом объемов гранул, составляющих оптимальный кластер. Магнитосопротивление насыщается вместе с намагниченностью этого кластера, однако с ростом поля все большее число малых гранул начинает вносить вклад в намагниченность. Именно это постепенное вовлечение все новых гранул в намагниченность приводит к медленному (как показано, близкому к логарифмическому) насыщению намагниченности и, следовательно, магнитосопротивления системы.

Таким образом, предложенная модель приводит к качественно правильному описанию экспериментальных результатов по исследованию магнитосопротивления гранулярного ферромагнитного металла $Fe_x(SiO_2)_{1-x}$ в сильных магнитных полях.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проекты 99-02-16955 и 00-02-17191) и российско-французской программой PICS-RFBR (грант 98-02-22037).

ЛИТЕРАТУРА

1. J. S. Helman and B. Abeles, Phys. Rev. Lett. **37**, 1429 (1976).
2. J. Inoue and S. Maekawa, Phys. Rev. B **53**, R11927 (1996).
3. Е. З. Мейлихов, ЖЭТФ **115**, 1484 (1999).
4. Е. З. Мейлихов, Письма в ЖЭТФ **69**, 579 (1999).
5. Е. З. Мейлихов, ЖЭТФ **116**, 2182 (1999).
6. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Физматгиз, Москва (1959).