

КОНЦЕНТРАЦИОННОЕ ПОВЕДЕНИЕ АНОМАЛЬНОГО ЭФФЕКТА ХОЛЛА В ГРАНУЛИРОВАННЫХ ПЛЕНКАХ Fe/SiO_2 НИЖЕ ПОРОГА ПРОТЕКАНИЯ

Б.А.Аронзон, А.Б.Грановский⁺, Д.Ю.Ковалев, Е.З.Мейлихов, В.В.Рыльков¹⁾,
М.В.Седова*

Российский научный центр "Курчатовский институт"
123182 Москва, Россия

⁺Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия

* Научно-исследовательский центр прикладных проблем электродинамики
127412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 25 апреля 2000 г.

Исследован аномальный эффект Холла (АЭХ) в нанокompозитных пленках $\text{Fe}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с $x < 0.7$ вблизи перколяционного перехода ($x_c \approx 0.6$). Обнаружено, что холловский угол при приближении к переходу с металлической стороны меняется немонотонно, проходя через минимум. Предложена качественная модель концентрационного поведения АЭХ, основанная на модели проводимости двухфазных систем вблизи порога протекания [9, 10]. АЭХ определяется двумя каналами проводимости, один из которых (хорошо проводящая сетка) образован крупными металлическими кластерами, разделенными ниже порога протекания узкими диэлектрическими прослойками; другой представляет диэлектрическую часть среды, содержащую изолированные Fe-гранулы, в которой АЭХ возникает за счет интерференции амплитуд туннельных переходов в совокупности из трех гранул. Показано, что при $x < x_c$ сетка может оказывать "шунтирующее действие", вследствие чего эффективная э.д.с. Холла оказывается даже меньше, чем э.д.с. Холла диэлектрической компоненты.

PACS: 72.80.Tm, 73.50.Jt

Особенность ферромагнитных материалов заключается в том, что поле Холла E_y в них складывается из двух компонент, одна из которых (нормальная) обусловлена действием силы Лоренца, а другая (аномальная) связана с влиянием спин-орбитального взаимодействия на рассеяние спин-поляризованных электронов и может на много порядков превышать нормальную компоненту [1, 2]. Недавно было обнаружено, что это относится и к нанокompозитам, представляющим собой совокупность хаотически расположенных металлических ферромагнитных включений размером 1–10 нм и диэлектрика, заполняющего промежутки между ними [3, 4]. В [3, 4] изучалась зависимость холловского сопротивления ρ_h от содержания металла x выше порога протекания. При этом выяснилось, что вблизи порога ($x \approx x_c$) величина ρ_h может быть на четыре порядка больше, чем в однородном случае ($x = 1$), поэтому эффект Холла в этих условиях и был назван "гигантским" [3, 4]. Отметим, что существующие перколяционные модели предсказывают увеличение ρ_h приблизительно на порядок, хотя в принципе учет возможности сильного рассеяния электронов на межгранульных барьерах позволяет достичь согласия с экспериментом [5].

Однако несмотря на гигантскую величину ρ_h , исследования аномального эффекта Холла (АЭХ), выполненные до сих пор, относятся в основном к нанокompозитам с ме-

¹⁾ e-mail: rylkov@imp.kiae.ru

таллической проводимостью, а имеющиеся отдельные данные для диэлектрических образцов ($x \leq x_c$) носят противоречивый характер. Так, результаты исследования диэлектрического образца Ni/SiO₂ в [3] показывают, что ρ_h испытывает насыщение вблизи перехода, то есть слабо зависит от $x \leq x_c$. Однако данные [6], полученные для нескольких образцов Co/AlO с разными типами проводимости (металлическим и диэлектрическим), но близкими значениями $x \approx x_c$ свидетельствуют о том, что ρ_h резко уменьшается ниже порога протекания. Эффект Холла в наноккомпозитах Fe/SiO₂ с диэлектрическим типом проводимости был исследован нами в [7], при этом, однако, удалось лишь показать, что эффект Холла в этих условиях является аномальным, и изучить его поведение в зависимости от температуры.

Таким образом, до сих пор остаются невыясненными два принципиальных вопроса: 1) как “сшиваются” данные по АЭХ при переходе через порог перколяции, то есть перестает ли эффект Холла быть “гигантским” и 2) каковы основные факторы, определяющие поведение АЭХ вблизи порога перколяции.

В действительности эффект Холла более естественно характеризовать не холловским сопротивлением ρ_h , а холловским углом β , который в случае относительно высокоомных объектов (когда приходится уменьшать ток через образец и переходить к режиму измерения при постоянном напряжении) является более информативным параметром²⁾. Именно по этой причине мы анализировали в данной работе не столько холловское сопротивление ρ_h , сколько холловский угол β , исследуя его концентрационную зависимость вблизи перколяционного перехода. Оказалось, что при приближении к перколяционному переходу с металлической стороны холловский угол β резко падает, проходя по мере удаления в диэлектрическую область через минимум. Необычное поведение эффекта Холла объясняется особенностями проводимости двухфазных систем вблизи порога протекания [9, 10].

Исследуемые образцы были изготовлены в стандартной геометрии двойного холловского креста. Ширина проводящего канала $W = 2$ мм, длина $L = 7$ мм. Толщины пленок Fe/SiO₂ варьировались в диапазоне $d = 0.2 - 0.8$ мкм. Образцы были получены как без нагрева подложки в процессе их изготовления, так и с нагревом до $T \approx 170$ °C; результаты их структурного анализа описаны в [11]. Важно отметить, что пленки характеризовались разбросом гранул по размерам и существованием мелкодисперсной металлической фазы, не разрешимой в электронном микроскопе. Данное обстоятельство присуще широкому классу гранулированных систем, о чем свидетельствуют результаты недавних исследований пленок NiFe/SiO₂ [4] и Co/AlO [12].

Измерения эффекта Холла проводились в магнитных полях до 10 кЭ при температурах $T = 77 - 300$ К в режиме постоянного напряжения $V_x = 5$ В. Для того чтобы охарактеризовать образцы по степени близости к переходу, были исследованы также температурные зависимости проводимости $G = I_x/V_x$ (I_x – ток через образец). На рис.1 показаны зависимости $G(T)$ для нескольких диэлектрических образцов с содержанием Fe, близким к порогу протекания ($x \leq x_c \approx 0.6$), полученных без нагрева подложки. Для сравнения также представлены зависимости $G(T)$ для металлического образца с $x \approx 0.7$ и диэлектрического образца, полученного на нагретую до

²⁾ В случае, например, прыжковой проводимости легированных полупроводников ρ_h экспоненциально растет при удалении в диэлектрическую область, при этом β оказывается экспоненциально малой величиной [8]. Не удивительно поэтому, что до сих пор отсутствуют экспериментальные данные по прыжковому эффекту Холла в подобных перколяционных системах [8].

$T \approx 170^\circ\text{C}$ подложку. Для всех диэлектрических образцов зависимости $G(T)$ спрямляются в координатах $\log(G) - T^{-1/2}$ в широком диапазоне температур, то есть нагрев подложек не сказывается кардинальным образом на виде зависимости $G(T)$. Данное обстоятельство [13] связано с 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 и является более надежной характеристикой близости образцов к перколяционному переходу, чем состав, точность определения которого мала [7]. Отметим, что в металлическом образце проводимость степенным образом уменьшается с температурой, что типично для образцов, близких к перколяционному переходу с металлической стороны [3].

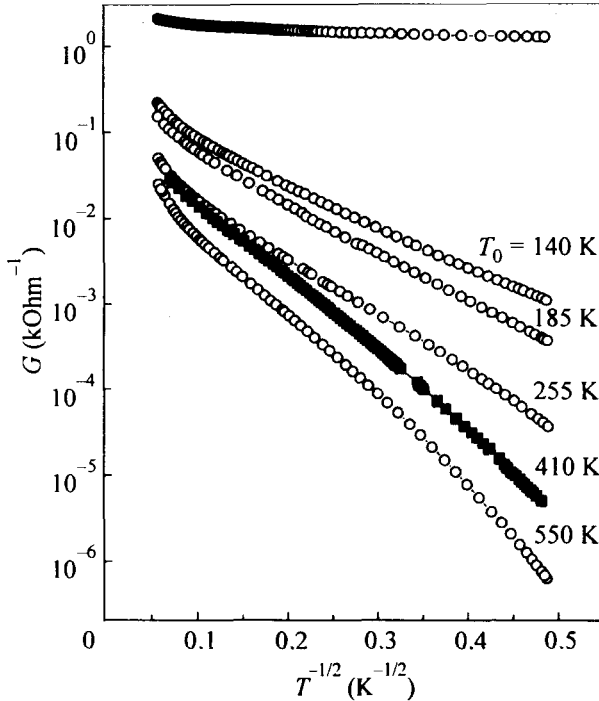


Рис.1. Температурные зависимости проводимости в образцах с диэлектрическим (при различных значениях T_0) и металлическим характером проводимости ($x \approx 0.7$). ■ - температурная зависимость проводимости для образца, полученного при нагреве подложки до $T \approx 170^\circ\text{C}$

АЭХ изучался в магнитных полях 8–10 кЭ в условиях, когда намагниченность M достигает предельной величины и слабо зависит от температуры [6]. Холловское сопротивление R_h определялось по разности значений поперечного сопротивления $R_{xy} = V_y/I_x$ (V_y – напряжение между холловскими зондами), отвечающих положительному, R_{xy}^+ , и отрицательному, R_{xy}^- направлению магнитного поля: $R_h = (R_{xy}^+ - R_{xy}^-)/2$; холловский угол находился из выражения $\beta = E_y/E_x = R_h GL/W$.

Зависимость холловского угла от параметра T_0 представлена на рис.2; на вставке также приведена кривая удельного холловского сопротивления $\rho_h = R_h \cdot d$. Видно, что в области перехода β резко падает с ростом T_0 , при этом на зависимости $\beta(T_0)$ проявляется минимум. В области падения β наблюдается выполаживание в холловском сопротивлении с тенденцией выхода на новое плато при увеличении T_0 . Наиболее четко эти плато в ρ_h выражены при комнатной температуре; перепад между ними составляет приблизительно 4 раза. Отметим, что факт насыщения зависимости $\rho_h(x)$ на металлической стороне перколяционного перехода, наблюдаемый в системе Ni/SiO₂ [3], интерпретировался как предельное значение холловского сопротивления.

Однако данные, представленные на вставке рис.2, демонстрируют, что в диэлектрической области происходит дальнейший рост ρ_h . Обратим также внимание на то, что для образца, полученного при нагреве подложки, значение холловского угла приблизительно на порядок меньше, чем в случае аналогичных образцов, полученных без нагрева.

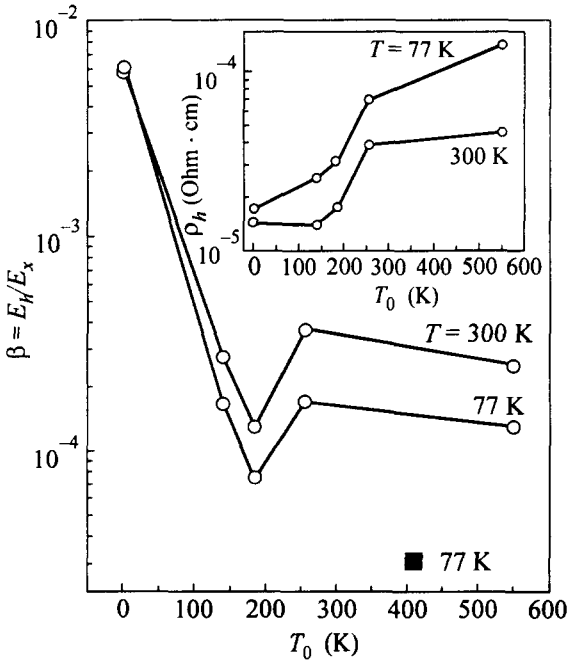


Рис.2. Зависимости тангенса холловского угла и удельного холловского сопротивления (вставка) от величины параметра T_0 при различных температурах. Зависимости получены при величине магнитного поля $H = 8.4$ кЭ. Точки на кривых при $T_0 = 0$ соответствуют образцу с содержанием железа $x \approx 0.7$; ■ – значение тангенса холловского угла при $T = 77$ K для образца, полученного при нагреве подложки до $T \approx 170$ °C

Хорошо известно на примере полупроводников, что эффект Холла в прыжковом режиме возникает благодаря интерференции амплитуд туннельных переходов в совокупности из трех центров [14]. Результаты [14] были обобщены в работе [15], в которой показано, что при наличии спин-орбитального взаимодействия в системах с прыжковой проводимостью, обладающих намагниченностью, точно таким же образом возникает АЭХ. Используя подход [15] и приняв во внимание, что в наших условиях гранулы распределены по размерам и эффект Холла определяется тройками гранул оптимального размера [6], мы нашли параметрическую связь холловского, ρ_h , и продольного, ρ_{xx} , сопротивлений (параметр – температура): $\rho_h \propto \rho_{xx}^m$; $m \approx 0.6$, согласующуюся с результатами эксперимента.

Представляется, что учет широкого распределения гранул по размерам и возможности их кластеризации вблизи порога перколяции позволяет объяснить также концентрационное поведение эффекта Холла. Действительно, композит является двухкомпонентной средой, одна из компонент которой представляет собой плохо проводящую фазу, состоящую из диэлектрика SiO_2 и изолированных гранул Fe. Другая компонента – металлические образования, составляющие хорошо проводящую сетку, которая при $x > x_c$ превращается в бесконечный металлический кластер, а на диэлектрической стороне перехода состоит из больших металлических агрегатов (размером порядка радиуса L корреляции перколяционного кластера), разделенных узкими диэлектрическими прослойками (рис.3). Вклад в эффект Холла могут давать

как проводящая сетка, так и плохо проводящая диэлектрическая фаза [6]. Поэтому АЭХ в такой системе следует рассматривать на основе двухзонной модели [10, 16], предполагающей наличие двух параллельных каналов проводимости. В рамках данной модели для холловского сопротивления имеем

$$\rho_h = \frac{\rho_n \sigma_n^2 + \rho_d \sigma_d^2}{(\sigma_n + \sigma_d)^2} \approx \rho_m + \rho_d \frac{\sigma_d^2}{\sigma^2(x)}, \quad (1)$$

где ρ_n, ρ_d – холловские сопротивления сетки и диэлектрической компоненты, соответственно, σ_n, σ_d – их проводимости, $\sigma(x) = (\sigma_n + \sigma_d)$ – эффективная проводимость среды, монотонно убывающая с уменьшением содержания металла x (то есть с увеличением параметра T_0 при $x < x_c$), ρ_m – холловское сопротивление объемного металла³⁾. В (1) мы учли, что $\sigma_d \ll \sigma_n \sim \sigma_m$, где σ_m – проводимость металла, и, кроме того, пренебрегли отличием холловского поля в прослойках от поля в металлических перетяжках; при этом $\rho_n \approx \rho_m \sim \sigma_m$. Используя (1), находим

$$\beta = H \left(\frac{\mu_m}{\sigma_m} \right) \left[\sigma(x) + \frac{\mu_d \sigma_d \sigma_m}{\mu_m \sigma(x)} \right], \quad (2)$$

где μ_m, μ_d – холловские подвижности металлической и диэлектрической компонент, соответственно.

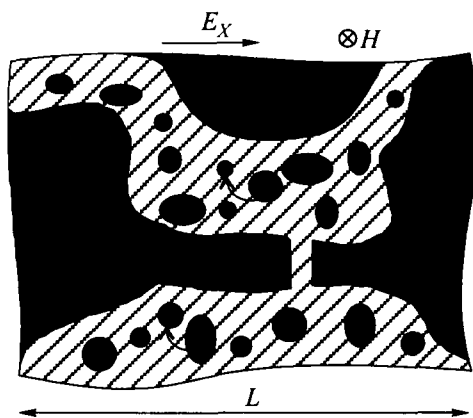


Рис.3. Характерный фрагмент среды размером порядка радиуса корреляции L . Заштрихована диэлектрическая компонента, содержащая мелкодисперсную металлическую фазу; черным обозначены металлические образования. Направление туннелирования электронов показано стрелками

Выражение (2) предсказывает минимум в зависимости β от $\sigma(x)$, причем при уменьшении $\sigma(x)$, когда $\sigma(x) \rightarrow \sigma_d$, значение β стремится к постоянной величине $\beta = H\mu_d$, определяемой холловской подвижностью диэлектрической компоненты. Согласно [9, 10], при $\mu_m = \mu_d$ минимум должен наблюдаться при $x = x_c$, когда значение проводимости $\sigma_{min} = \sigma_c = (\sigma_m \sigma_d)^{1/2}$. В нашем случае подвижность диэлектрической компоненты явно меньше μ_m (см. рис.2) и из (2) следует, что $\sigma_{min} = (\mu_d \sigma_m \sigma_d / \mu_m)^{1/2}$, то есть меньше σ_c . Поэтому неудивительно, что минимум проявляется ниже порога протекания, где σ активационным образом зависит от температуры.

Очевидно, что минимум на кривой $\beta(T_0)$ обусловлен эффектами шунтирования холловского поля металлическими кластерами, наиболее сильно проявляющимися в

³⁾ В [10] с помощью метода Дыхне [9] получены точные результаты для эффекта Холла в случае двухкомпонентных 2D систем, которые приводят к соотношению (1) при выполнении условий $\sigma_m / \sigma_d \gg 1, \sigma_n^2 / \sigma_d^2 \gg \rho_d / \rho_m \gg 1$.

окрестности перколяционного перехода при $\sigma \sim \sigma_{min}$. По сути, это есть следствие особенностей эффекта Холла в режиме двухканальной проводимости. В нашем случае вклад в э.д.с. Холла от проводящей сетки падает с уменьшением ее проводимости (см. (2)). В ситуации, когда этот вклад оказывается меньше, чем вклад от диэлектрической компоненты, а проводимость сетки еще высока в сравнении с σ_d , э.д.с. Холла диэлектрической компоненты шунтируется.

В этих условиях естественно ожидать насыщения в холловском сопротивлении, которое наблюдается как в наших экспериментах (рис.2), так и в экспериментах [3]. Однако по мере удаления в диэлектрическую область расстояние между металлическими кластерами растет, а кроме того, они дробятся на более мелкие, вследствие чего эффекты шунтирования холловского поля подавляются. По этой причине на зависимости $\rho_h(T_0)$ при увеличении T_0 наблюдается подъем с тенденцией выхода на новое плато (рис.2), которое согласно (1) определяется холловским сопротивлением плохо проводящей диэлектрической компоненты.

В рамках используемой модели становится также понятным роль нагрева образцов в процессе их приготовления. Действительно, нагрев (отжиг) нанокompозитных образцов сопровождается укрупнением кластеров за счет уменьшения содержания мелкодисперсной металлической фазы. При этом вклад в э.д.с. Холла от диэлектрической компоненты должен подавляться. Поэтому неудивительно, что значение холловского угла в образце, полученном при нагреве подложки, заметно меньше, чем в случае образцов, приготовленных без нагрева подложки (рис.2).

В заключение отметим, что в отсутствие широкого распределения частиц по размерам ожидается меньший вклад диэлектрической компоненты в э.д.с. Холла, а следовательно, более резкое падение холловского угла. При этом насыщение в зависимости $\rho_h(x)$ при $x \leq x_c$ может сменяться падением, что, по-видимому, имело место в экспериментах [5].

Авторы выражают благодарность А.К.Сарычеву и А.А.Снарскому за обсуждение работы и ценные замечания. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты #99-02-16955 и #00-02-17191) и Российско-французского фонда PICS (#98-02-22037).

-
1. R.M.White and T.H.Geballe, *Long range order in solids*, Academic Press, New York, 1979.
 2. А.В.Ведяев, А.Б.Грановский, О.А.Котельникова, *Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах*, Изд-во МГУ, 1992.
 3. А.В.Pakhomov, X.Yan, and Y.Xu, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 6140 (1996); А.В.Pakhomov and X.Yan, *Sol. State Commun.* **99**, 139 (1996).
 4. А.В.Pakhomov, X.Yan, N.Wang et. al., *Physica A* **241**, 344 (1997).
 5. F.Brouers, A.Granovsky, A.Sarychev et al., *Physica A* **241**, 284 (1997).
 6. H.Sato, Y.Kobayashi, K.Hashimoto et al., *J. Magn. Soc. Japan* **23**, 73 (1999).
 7. Б.А.Аронзон, Д.Ю.Ковалев, А.Н.Лагарьков и др., *Письма в ЖЭТФ* **70**, 87 (1999).
 8. Ю.М.Гальперин, Е.П.Герман, В.Г.Карпов, *ЖЭТФ* **99**, 343(1992).
 9. А.М.Дыхне, *ЖЭТФ* **59**, 641 (1970).
 10. Б.И.Шкловский, *ЖЭТФ* **72**, 288 (1977).
 11. Б.А.Аронзон, А.Е.Варфоломеев, Д.Ю.Ковалев и др., *ФТТ* **41**, 944 (1999).
 12. S.Mitani, S.Takahashi, K.Takanashi et al., *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2799 (1998).
 13. Е.З.Мейлихов, *ЖЭТФ* **115**, 1484 (1999).
 14. T.Holstein, *Phys. Rev.* **124**, 1329 (1961).
 15. А.В.Ведяев, А.Б.Грановский, *ФТТ* **28**, 2310 (1986).
 16. А.А.Снарский, *ЖЭТФ* **91**, 1405 (1986).