

## Электронный транспорт в магнитном поле в гранулированных пленках аморфной двуокиси кремния с ферромагнитными наночастицами

© Л.В. Луцев, Ю.Е. Калинин\*, А.В. Ситников\*, О.В. Стогней\*

Научно-исследовательский институт „Домен“,  
196084 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: lutsev@domen.ru

\* Воронежский государственный технический университет,  
394026 Воронеж, Россия

E-mail: kalinin@ns1.vstu.ac.ru

(Поступила в Редакцию 13 ноября 2001 г.)

Исследован электронный транспорт в пленках аморфной двуокиси кремния с наночастицами (Co, Nb, Ta). В предположении, что электронный транспорт определяется неупругим резонансным туннелированием через цепочку локализованных состояний между гранулами, из температурных зависимостей проводимости найдено среднее число локализованных состояний в межчастичном туннельном канале при разных концентрациях гранул. Для подтверждения предположения о неупругом характере туннелирования исследованы зависимости магнитосопротивления от концентрации гранул, температуры и величины магнитного поля. В рамках одноорбитальной модели, когда туннельное магнитосопротивление между гранулами определяется  $s-s$ -туннелированием, найдено, что присутствие слабодисперсионных локализованных состояний в туннельном канале приводит к отсутствию насыщения магнитосопротивления в сильных магнитных полях. Одновременное понижение коэффициента  $s-s$ -туннелирования и рост вероятности неупругого рассеяния спина электрона при увеличении длины межчастичной цепочки локализованных состояний, по которой туннелирует электрон, формируют характерные температурно-концентрационные зависимости магнитосопротивления. Экспериментальное обнаружение этих особенностей подтверждает то, что электронный транспорт в структурах  $\alpha$ -SiO<sub>2</sub> (Co, Nb, Ta) определяется неупругим резонансным туннелированием через локализованные состояния между гранулами.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 99-02-17071).

Электронный транспорт в магнитном поле в гранулированных структурах с наноразмерными ферромагнитными частицами (гранулами) в изолирующей матрице обладает рядом свойств, существенно отличающих эти структуры от объемных аморфных и кристаллических материалов. К таким свойствам можно отнести температурные аномалии гигантского магнитосопротивления, связанные с кулоновской блокадой [1], аномальный эффект Холла в режиме туннельной проводимости [2,3], долговременную релаксацию намагниченности и туннельного магнитосопротивления [4].

Целью настоящей работы является исследование влияния локализованных состояний в матрице на магнитосопротивление гранулированных структур. Экспериментальные исследования проводились на гранулированных пленках аморфной двуокиси кремния с ферромагнитными наночастицами Co<sub>86</sub>Nb<sub>12</sub>Ta<sub>2</sub>. Концентрации металлической фазы (гранул) имели значения, при которых гранулированная структура находилась ниже порога перколяции. В этом случае основной вклад в электронный транспорт вносит процесс туннелирования электронов между гранулами. Туннелирование может иметь как упругий, так и неупругий характер и осуществляться через локализованные состояния в матрице. Для нахождения числа локализованных состояний использована

теоретическая модель, связывающая неупругое резонансное туннелирование через цепочку локализованных состояний в аморфной матрице между гранулами с температурной зависимостью проводимости [5,6]. Согласно этой модели, показатель степени температурной зависимости проводимости в канале, содержащем  $n$  локализованных состояний вблизи уровня Ферми, полностью определяется числом  $n$ .

Экспериментальные исследования магнитосопротивления проводились при температурах 77 и 295 К в диапазоне магнитных полей  $H$  от 0 до 25 кОе. Обнаружено, что магнитосопротивление является отрицательным. Оно слабо зависит от величины магнитного поля и мало при  $H < 2$  кОе. При  $H > 2$  кОе в гранулированных структурах, которые имеют концентрации металлической фазы, соответствующие области перколяционного порога, существует интервал магнитных полей, в котором изменение сопротивления максимально. При дальнейшем увеличении поля наступает насыщение магнитосопротивления. В гранулированных структурах с меньшими концентрациями металлической фазы эффект насыщения магнитосопротивления в исследованном диапазоне магнитных полей либо значительно менее выражен, либо отсутствует. Найдено, что температурные изменения магнитосопротивления при малых концен-

трациях гранул значительно больше, чем в структурах вблизи порога перколяции. При этом в структурах с малыми концентрациями гранул при низких температурах ( $T = 77$  К) магнитосопротивление достигает большего значения, чем в гранулированных структурах вблизи перколяционного порога. В данной работе показано, что большинство вышеназванных свойств магнитосопротивления может быть объяснено спин-зависимым туннелированием через локализованные состояния в матрице. Для объяснения экспериментальных фактов использована модель туннельного магнитосопротивления, развитая в [7,8].

## 1. Температурные зависимости проводимости и число локализованных состояний в матрице

Вопрос о формировании температурных зависимостей проводимости в гранулированных структурах до сих пор остается открытым. Экспериментально было найдено, что проводимость  $\sigma$  в гранулированных структурах изменяется с температурой в соответствии с законом

$$-\ln \sigma \propto T^{-\alpha} \quad (1)$$

с  $\alpha = 1/2$  [9,10]. Для объяснения соотношения (1) привлекались различные модели. В частности, закон  $1/2$  можно трактовать как проявление кулоновской щели в плотности  $g(E)$  состояний электронов на гранулах, когда вблизи энергии Ферми  $E_F$  плотность состояний обращается в нуль по закону  $g(E) \propto (E - E_F)^2$ . Кулоновская щель образуется в неупорядоченных системах как результат кулоновского взаимодействия между гранулами [11,12]. При этом существенно наличие достаточно большого случайного потенциала, обеспечивающего перезарядку изначально нейтральных гранул в основном состоянии системы [13]. Щель образуется, когда величина случайного потенциала становится сравнимой с зарядовой энергией частиц. Однако щелевая модель реализуется только при низких температурах. В [14] показано, что закон  $1/2$  может являться следствием разброса гранул по размерам.

В настоящей работе для получения соотношения (1) привлечена теоретическая модель неупругого туннелирования через аморфные слои [5,6]. Согласно ей, наблюдаемые экспериментальные температурные зависимости проводимости объясняются резонансным туннелированием через цепочку локализованных состояний в аморфном слое между туннельными контактами. В силу достаточно большого количества атомов в грануле ( $N \sim 1000$ ) данная теоретическая модель может быть применима для определения характера электронного транспорта между металлическими частицами в гранулированных структурах. Этому способствует также то, что кулоновская энергия между гранулами может приводить к формированию квазистабильных одномерных

каналов проводимости [15]. Данная модель была использована для объяснения температурных зависимостей одноэлектронного транзистора в условиях кулоновской блокады [16]. Источниками локализованных состояний являются дефекты структуры матрицы и границ раздела гранула-матрица. Наличие этих состояний приводит к резкому возрастанию туннельной прозрачности барьера. Согласно модели [5,6], существенную роль в механизме проводимости играют процессы неупругого резонансного туннелирования в каналах, содержащих локализованные состояния вблизи уровня Ферми с разбросом энергий порядка  $kT$ . Температурная зависимость проводимости в канале, содержащем  $n$  примесей, имеет степенной вид [5]

$$\sigma_n = P \left( \frac{\Lambda^2}{\rho_0 c^5} \right)^{(n-1)/(n+1)} \frac{(g a^2 n^2 l)^n T^{\gamma_n} E^{\beta_n}}{a l} \times \exp \left[ \frac{-2l}{a(n+1)} \right], \quad (2)$$

где  $a$  — радиус локализованного состояния,  $l$  — среднее расстояние между гранулами,  $\gamma_n = n - 2/(n+1)$ ,  $\beta_n = 2n/(n+1)$ ,  $P$  — коэффициент,  $\Lambda$  — константа деформационного потенциала,  $\rho_0$  — плотность вещества матрицы,  $c$  — скорость звука,  $g$  — плотность локализованных состояний,  $E$  — глубина залегания локализованного состояния в области барьера. Средняя проводимость между гранулами определяется суммой

$$\sigma^{(gr)} = \sum_n \sigma_n. \quad (3)$$

При повышении температуры включаются неупругие каналы с большим числом примесей. В [5] было показано, что существует температурный интервал  $[T_n, T_{n+1}]$ , в котором наибольший вклад в (3) вносит одно слагаемое  $\sigma_n$ . В этом интервале температурная зависимость проводимости  $\sigma^{(gr)}$  в (3) может быть аппроксимирована степенной зависимостью со степенью  $\gamma_n$ . При  $T > T^*$ , где  $T^*$  дается соотношением

$$\ln(T^* g a l^2) \approx - \left( \frac{l}{a} \right)^{1/3},$$

в (3) необходимо учитывать несколько каналов и проводимость  $\sigma^{(gr)}$  определяется вкладом каналов с числом  $n$ , находящимися вблизи среднего количества  $\langle n \rangle$  локализованных состояний между гранулами. В этом случае [5]

$$\ln \sigma^{(gr)} \propto - \left[ \frac{2l}{a} \ln \left( \frac{1}{g a l^2 T} \right) \right]^{1/2}. \quad (4)$$

При определенных радиусах локализованного состояния  $a$  и расстояниях между гранулами  $l$ , попадающих в область значений вблизи  $g a l^2 T \approx 1$ , в первом приближении степенного разложения по  $1/T$  в (4)  $\sigma^{(gr)}$  обнаруживает температурную зависимость (1) с  $\alpha = 1/2$ .

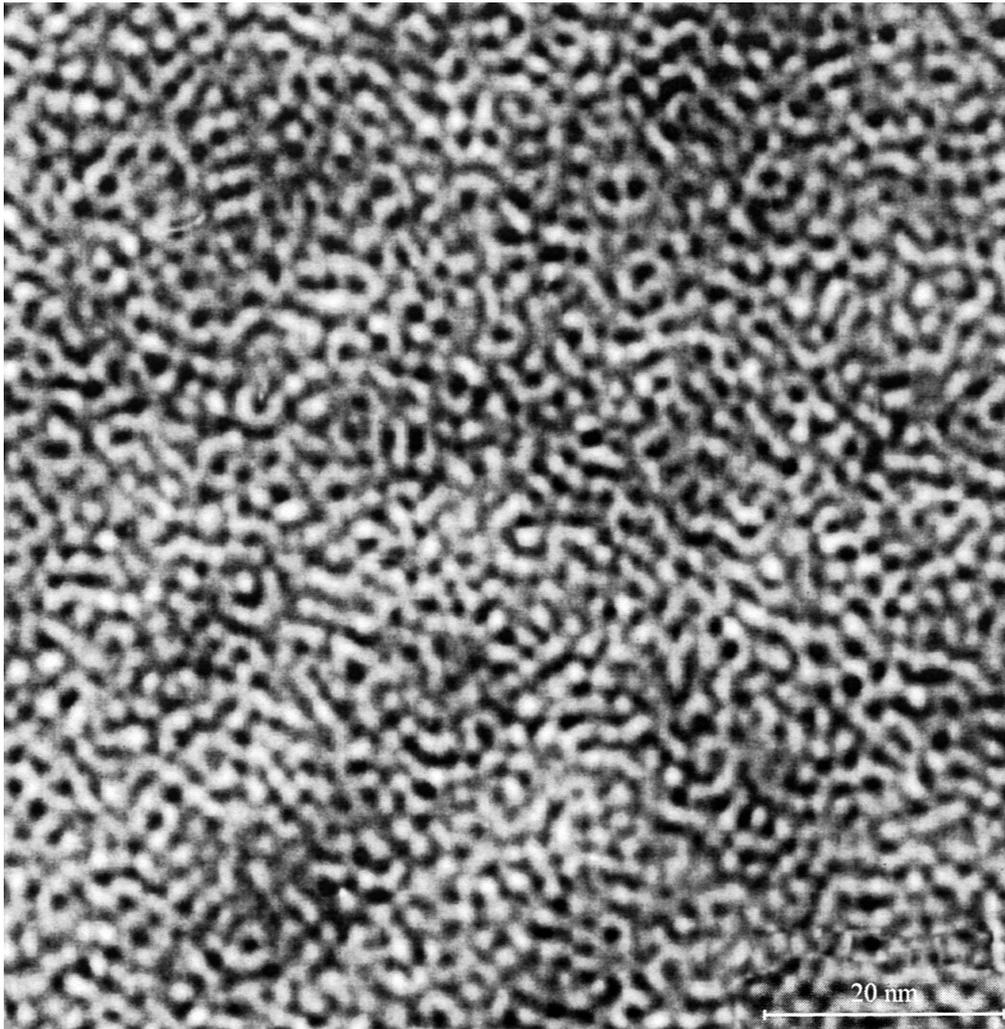


Рис. 1. Микроструктура гранулированной пленки  $(a\text{-SiO}_2)_{100-x} + (\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2)_x$  с  $x = 63$  at.%.

К аналогичным следствиям можно прийти при рассмотрении модели прыжковой проводимости в контактах металл–полупроводник–металл, развитой в [17].

Увеличение расстояния между гранулами ведет к росту числа каналов и количества примесей в каналах. При  $n \rightarrow \infty$  суммарная проводимость по всем каналам переходит от режима резонансного туннелирования к режиму прыжковой проводимости, определяемому законом Мотта [18], имеющим вид (1) с  $\alpha = 1/4$ .

В гранулированной структуре ниже перколяционного порога общая проводимость структуры  $\sigma$  определяется туннельной проводимостью между гранулами  $\sigma^{(\text{gr})}$  или, если гранулы образуют ограниченные проводящие кластеры, проводимостью кластеров и проводимостью между кластерами  $\sigma^{(\text{gr})}$ . Поскольку проводимость кластеров значительно выше туннельной проводимости, в первом приближении будем считать, что проводимость  $\sigma$  гранулированной структуры в температурном интервале  $[T_n, T_{n+1}]$  имеет степенную зависимость от температуры, которая определяется  $\sigma^{(\text{gr})}$  с  $n = \langle n \rangle$  (усредненному

по всей структуре числу локализованных состояний в туннельных каналах между гранулами). Аппроксимируя температурные зависимости проводимости, полученные экспериментально, степенными зависимостями со степенью  $\gamma$  и учитывая (2), можем определить среднее число локализованных состояний  $\langle n \rangle$ , которые принимают участие в электронном транспорте в гранулированной структуре при данной температуре,

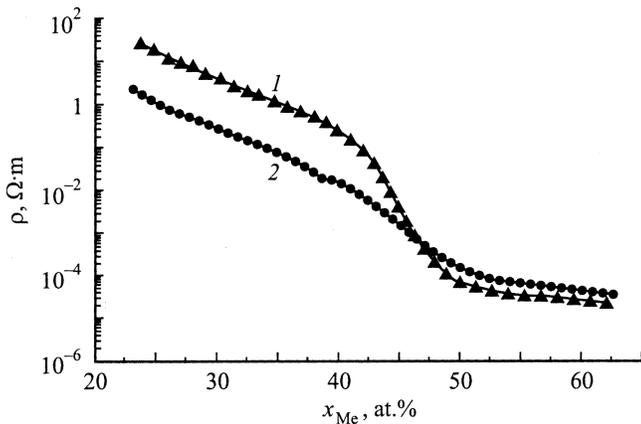
$$\langle n \rangle = \frac{1}{2} [\gamma - 1 + (\gamma^2 + 2\gamma + 9)^{1/2}]. \quad (5)$$

Такая методика для нахождения  $\langle n \rangle$  была применена в [19] для структуры  $a\text{-C:H(Co)}$ .

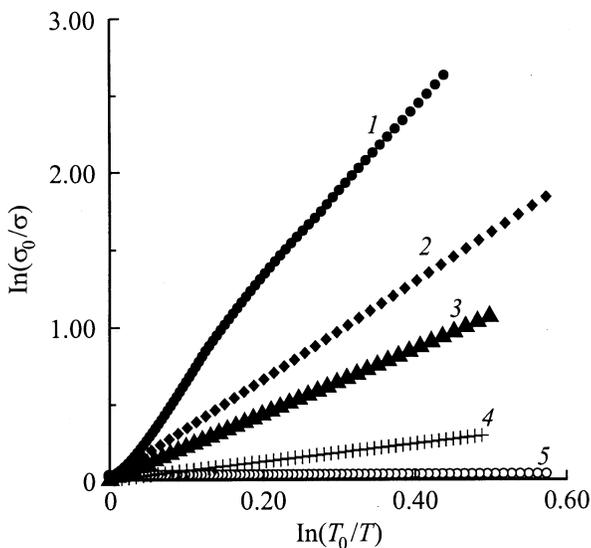
Экспериментальные исследования по определению числа локализованных состояний из температурных зависимостей проводимости были выполнены на пленках аморфной двуокиси кремния  $a\text{-SiO}_2$  с ферромагнитными наночастицами  $\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2$ . Пленки  $(a\text{-SiO}_2)_{100-x} + (\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2)_x$  были выращены на неподвижных ситалловых подложках методом ионно-лучевого сораспыления  $\text{SiO}_2$  и сплава  $\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2$

ионами аргона. Толщины пленок находились в диапазоне 4.0–5.1  $\mu\text{m}$ . Значения концентраций металлической фазы  $x$ , выраженные в атомных процентах, лежали в диапазоне 22.4–63 at.% и соответствовали структурам с концентрациями гранул ниже перколяционного порога. Средний размер гранул увеличивался с ростом концентрации: от 2 nm при  $x = 22.4$  at.% до 5 nm при  $x = 63$  at.% (рис. 1). Темные включения соответствуют гранулам металлического сплава, а светлый фон — диэлектрической фазе двуокиси кремния.

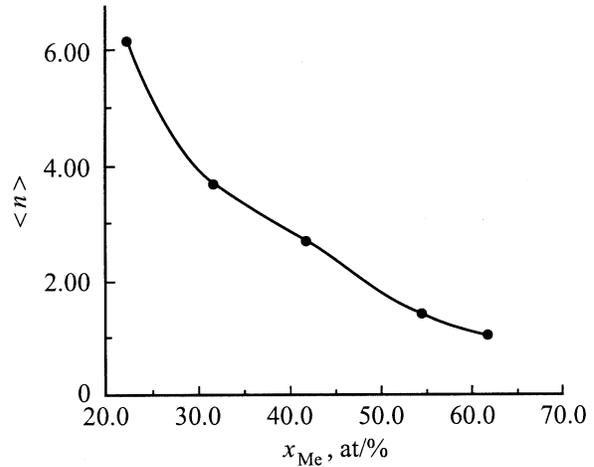
На рис. 2 представлены концентрационные зависимости удельного электрического сопротивления  $\rho = \sigma^{-1}$  гранулированных пленок  $(a\text{-SiO}_2)_{100-x} + (\text{Co}_{0.86}\text{Nb}_{1.2}\text{Ta}_2)_x$  при комнатной температуре для образцов в исходном



**Рис. 2.** Удельное электрическое сопротивление  $\rho$  гранулированной структуры  $(a\text{-SiO}_2)_{100-x} + (\text{Co}_{0.86}\text{Nb}_{1.2}\text{Ta}_2)_x$  в зависимости от концентрации металлической фазы  $x$ . 1 — после проведения отжига, 2 — до отжига.



**Рис. 3.** Относительные температурные зависимости проводимости неотожженных образцов  $a\text{-SiO}_2$  (Co, Nb, Ta) при различных концентрациях гранул.  $x$ , at.%: 1 — 22.4, 2 — 31.7, 3 — 41.9, 4 — 54.5, 5 — 61.7.



**Рис. 4.** Среднее число локализованных состояний  $\langle n \rangle$  в туннельных каналах между гранулами в зависимости от концентрации металлической фазы  $x$  в неотожженных пленках  $a\text{-SiO}_2$  (Co, Nb, Ta).

состоянии и после термической обработки. Отжиг пленок проводился в вакууме  $\sim 10^{-6}$  Torr при  $T = 400^\circ\text{C}$  в течение 30 min. После термообработки зависимости удельного сопротивления приобретали S-образную форму, характерную для перколяционных систем. Следует заметить, что отжиг гранулированных структур приводит к увеличению электрического сопротивления для составов с малой концентрацией металлической фазы и к его уменьшению при больших  $x$ , находящихся вблизи области порога перколяции. При этом область порога перколяции после отжига сдвигается в сторону меньших концентраций  $x$ .

Температурные зависимости проводимости для неотожженных образцов были измерены при протекании тока в плоскости пленки (горизонтальная геометрия) при напряжении 0.1 V в режиме охлаждения. Для выявления степенного закона на рис. 3 построены относительные температурные зависимости в двойном логарифмическом масштабе. Начальной точкой является проводимость  $\sigma_0$  при  $T_0 = 292$  K. Среднее число локализованных состояний  $\langle n \rangle$  в туннельных каналах между изолированными проводящими кластерами в зависимости от концентрации гранул находилось из степени  $\gamma$  температурных зависимостей проводимости по формуле (5) и показано на рис. 4. Видно, что  $\langle n \rangle$  достаточно быстро увеличивается с уменьшением концентрации  $x$ .

## 2. Магнитосопротивление

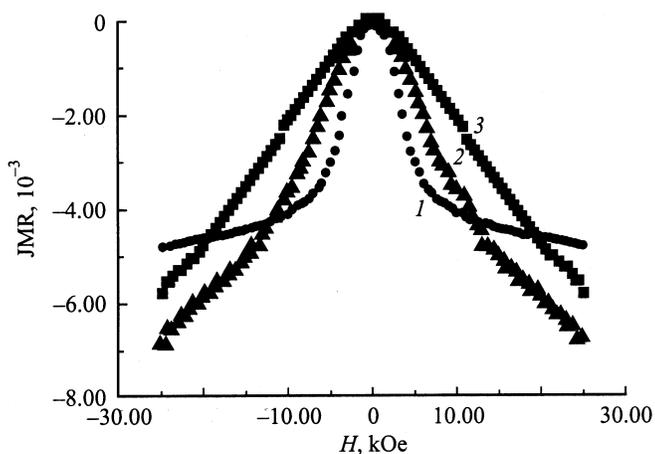
Локализованные состояния в изолирующей матрице оказывают достаточно сильное влияние на спинполяризационный электронный транспорт. Хотя проводимость при туннелировании между ферромагнитными металлами увеличивается с ростом количества примесей в изолирующей прослойке, туннельное магнитосопротивление

тивление при этом снижается вплоть до 4% [20,21]. Резкому падению магнитосопротивления способствуют множество резонансных состояний на примесях, которые приводят к уменьшению поляризации туннелирующих электронов, и случайность расположения примесей, на которых рассеиваются электроны. Вместе с тем отмечается, что магнитосопротивление туннельных контактов в присутствии парамагнитных примесей может быть больше, чем в той же структуре без примесей [22].

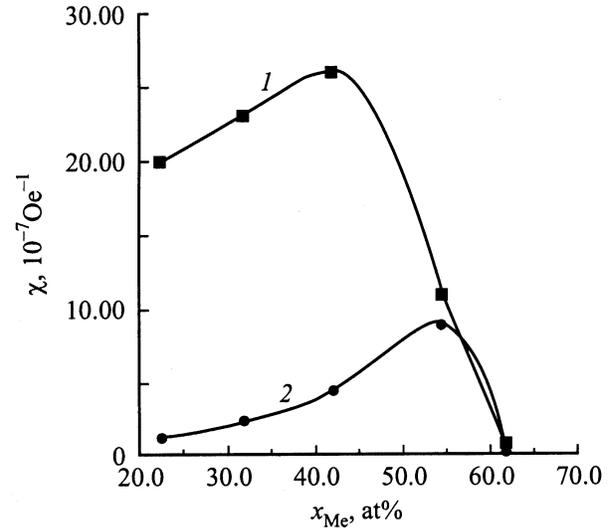
Определим магнитосопротивление JMR (junction magnetoresistance) формулой [8]

$$\text{JMR} = \frac{R(H) - R(0)}{R(0)} = \frac{\sigma(0) - \sigma(H)}{\sigma(H)}, \quad (6)$$

где  $R(0)$ ,  $R(H)$  — сопротивление между контактами без поля и в магнитном поле с напряженностью  $H$ . Измерения магнитосопротивления неотожженных гранулированных структур  $a\text{-SiO}_2$  (Co, Nb, Ta) проводились при  $T = 77$  и  $295$  К при горизонтальном расположении электрических контактов в магнитных полях, ориентированных перпендикулярно плоскости пленки и имеющих значения от 0 до 25 кОе. На рис. 5 показана зависимость магнитосопротивления JMR от величины приложенного магнитного поля при температуре 295 К для структур с разными концентрациями гранул. Магнитосопротивление было отрицательным, т.е. сопротивление между контактами с увеличением поля понижалось. В пределах погрешности эксперимента не было выявлено гистерезисных явлений. В магнитных полях до 2 кОе величина JMR мало изменялась и была незначительной. В диапазоне полей 2–7 кОе наблюдалось максимальное изменение сопротивления в зависимости от магнитного поля. В структурах, которые имели большие концентрации металлических гранул  $\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2$  ( $x = 53\text{--}56$  at.%) и находились вблизи области перколяционного порога, изменение сопротивления в диапазоне 2–7 кОе было



**Рис. 5.** Магнитосопротивление (JMR) неотожженной гранулированной структуры  $a\text{-SiO}_2$  (Co, Nb, Ta) в зависимости от величины внешнего магнитного поля  $H$  при различных концентрациях гранул.  $x$ , at.%. 1 — 54.5, 2 — 41.9, 3 — 31.7.



**Рис. 6.** Производная относительного удельного сопротивления от магнитного поля  $\chi$  при  $H = 3$  кОе в зависимости от концентрации металлической фазы  $x$  в неотожженной гранулированной структуре  $a\text{-SiO}_2$  (Co, Nb, Ta) при температуре 77 (1) и 295 К (2).

более значительным, чем в структурах с меньшими концентрациями гранул. При дальнейшем повышении величины поля для структур с концентрациями гранул вблизи порога перколяции наступало насыщение JMR. В структурах с меньшими концентрациями металлической фазы эффект насыщения магнитосопротивления либо был значительно менее выражен, либо отсутствовал.

Температурные измерения магнитосопротивления проводились вблизи магнитного поля  $H = 3$  кОе. Измерялась производная относительного сопротивления от поля  $\chi = -dR/RdH$ . На рис. 6 представлены концентрационные зависимости  $\chi$  при  $T = 77$  и  $295$  К. Обращает на себя внимание то, что в структурах с малыми концентрациями гранул температурные изменения  $\chi$  и, следовательно, JMR являются более значительными, чем в структурах, имеющих концентрации металлической фазы в области перколяционного порога. При этом для структур с меньшими концентрациями гранул значение JMR при  $T = 77$  К имеет значительно большую величину.

### 3. Обсуждение результатов

Для объяснения экспериментально обнаруженных особенностей спин-зависимого туннелирования в гранулированных структурах используем модель туннельного магнитосопротивления [7,8]. Предположим, что 1) при туннелировании между гранулами спин электрона сохраняется; 2) на процесс туннелирования между любыми двумя гранулами не оказывают влияния другие гранулы; 3) электроны туннелируют с уровня Ферми одной гранулы на уровень Ферми другой.

Тогда проводимость канала с поляризацией  $\nu = \uparrow, \downarrow$  между двумя гранулами будет иметь вид [7,8]

$$\sigma^{(\text{gr})\nu} = \frac{4e^2}{h} \text{tr} [T_{10}^\nu \text{Im} g_{00}^{\nu\nu}(E_F)] [T_{01}^\nu \text{Im} g_{11}^{\nu\nu}(E_F)]. \quad (7)$$

В (7)  $g_{00}^{\nu\nu}, g_{11}^{\nu\nu}$  являются  $\nu\nu$ -проекциями одноэлектронных функций Грина на двух изолированных соседних гранулах 0 и 1;  $\nu$  — спиновый индекс туннелирующего электрона;  $T_{10}^\nu = T_{01}^{\nu+}$  — матрицы перехода;

$$g_{kk}^{\nu\nu'}(E_F) = \lim_{E \rightarrow E_F, \epsilon \rightarrow +0} \langle E_F, N, \nu | [E - \mathcal{H}(\mathbf{S}_k, \mathbf{H}) + i\epsilon \text{sign}(E - E_F)]^{-1} | E_F, N', \nu' \rangle,$$

где  $k = 0, 1$ ;  $\mathcal{H}$  — гамильтониан электрона в грануле, в котором учтено взаимодействие спина туннелирующего электрона со спином гранулы и взаимодействие спина гранулы с магнитным полем  $\mathbf{H}$ ;  $\mathbf{S}_k$  — спин гранулы  $k$ ;  $N, N'$  — квантовые числа электронов, находящихся на уровне Ферми  $E_F$  в грануле.  $g_{00}^{\nu\nu}, g_{11}^{\nu\nu}, T_{10}^\nu, T_{01}^\nu$  являются матрицами в пространстве квантовых чисел  $N$ . В операции  $\text{Tr}$  предполагается суммирование по этим квантовым числам. Матрицы перехода  $T_{10}^\nu, T_{01}^\nu$  связаны с матрицами коэффициентов перескока (hopping integrals)  $t_{10}^\nu = t_{01}^{\nu+}$ , определяемыми перекрытиями волновых функций электронов двух гранул, уравнением Дайсона

$$\begin{pmatrix} T_{00}^\nu & T_{01}^\nu \\ T_{10}^\nu & T_{11}^\nu \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & t_{01} \\ t_{10} & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} T_{00}^\nu & T_{01}^\nu \\ T_{10}^\nu & T_{11}^\nu \end{pmatrix} \begin{pmatrix} g_{00}^{\nu\nu} & 0 \\ 0 & g_{11}^{\nu\nu} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & t_{01} \\ t_{10} & 0 \end{pmatrix}. \quad (8)$$

Из (8) следует, что

$$T_{01}^\nu = t_{01} (I - g_{11}^{\nu\nu} t_{10} g_{00}^{\nu\nu} t_{01})^{-1},$$

где  $I$  — единичная матрица в пространстве квантовых чисел  $N$  электрона, находящегося на уровне Ферми в грануле. Сумма спин-зависимых проводимостей (7) дает проводимость между гранулами (3)

$$\sigma^{(\text{gr})} = \sigma^{(\text{gr})\uparrow} + \sigma^{(\text{gr})\downarrow}. \quad (9)$$

В исследованных нами гранулированных структурах волновые функции электронов в грануле (Co, Nb, Ta) на уровне Ферми определяются  $s$ -,  $p$ -,  $d$ -электронами внешних оболочек атомов металлов, входящих в гранулу. Волновые функции электронов на двух соседних гранулах 0 и 1, составленные из линейных комбинаций произведений атомных функций определенных орбиталей, имеют интеграл перекрытия, пропорциональный [7,23]

$$C_{\lambda_0 \lambda_1 \mu} l^{-(\lambda_0 + \lambda_1 + 1)},$$

где  $l$  — расстояние между гранулами,  $C_{\lambda\nu\mu}$  — не зависящая от расстояния константа,  $\lambda_0, \lambda_1 = 0, 1, 2$  (для  $s, p, d$ ) — орбитальные индексы атомных волновых

функций, из которых составлены волновые функции электронов в грануле;  $\mu = \sigma, \pi, \delta \dots$  определяет суммарную проекцию угловых моментов орбиталей атомов двух гранул. Если расстояние  $l$  между двумя соседними гранулами превышает определенное значение (для атомов Co оно приблизительно равно одноатомному слою кобальта при туннелировании через вакуумный промежуток между двумя электродами Co [7]), то наибольшее значение будут иметь интегралы перекрытия волновых функций, составленных из  $s$ -орбиталей атомов металлов. Следовательно, в качестве первого приближения в (7), (8) в множестве квантовых чисел  $N$  электронов, находящихся на уровне Ферми, можно ограничиться квантовыми числами  $N_s$  волновых функций, составленных из  $s$ -орбиталей. Такое приближение носит название одноорбитальной модели, и соответственно туннелирование между гранулами определяется как  $s$ - $s$ -туннелирование [7]. Применимость одноорбитального приближения ограничивается величиной спин-орбитального взаимодействия, которое приводит к тому, что к  $s$ -волновым функциям примешивается часть волновых функций  $d$ -орбиталей, и расстоянием между гранулами. При малых расстояниях  $l$  к  $s$ - $s$ -туннелированию между гранулами прибавляется определенная часть для  $s$ - $p$ -,  $s$ - $d$ -,  $p$ - $d$ -,  $\dots$ -туннелирования, что при некоторых обстоятельствах может дать значительное увеличение магнитосопротивления [7,24]. В этом случае необходимо рассмотрение многоорбитального приближения.

Магнитосопротивление (6) определяется зависимостью проводимости гранулированной структуры от магнитного поля. Согласно сделанному выше предположению, проводимость гранулированной структуры пропорциональна средней проводимости туннельных каналов между гранулами:  $\sigma \propto \sigma^{(\text{gr})}$ . Действие магнитного поля  $H$  на  $\sigma^{(\text{gr})}$  в (9) проявляется через изменение функций Грина  $g_{00}^{\nu\nu}, g_{11}^{\nu\nu}$  в (7), (8) и зависит от взаимного расположения спинов гранул. В приближении молекулярного поля при  $|\mathbf{S}_0| = |\mathbf{S}_1| = S$  расположение спинов относительно друг друга определяется корреляционной функцией [25]

$$\frac{\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_1 \rangle}{S^2} = L^2(\xi), \quad (10)$$

где  $L(\xi) = \text{cth} \xi - \xi^{-1}$  — функция Ланжевена.

Если гранулы связаны ферромагнитно,  $\xi$  является корнем уравнения [25]

$$\xi = \frac{\gamma_L \mu_B S H}{kT} + \frac{3T_M}{T} L(\xi),$$

где  $\gamma_L$  — фактор Ланде,  $\mu_B$  — магнетон Бора,  $T_M$  — температура перехода гранулированной структуры из суперпарамагнитного в ферромагнитное состояние.

В суперпарамагнитном случае

$$\xi = \frac{\gamma_L \mu_B S H}{kT}.$$

Рассмотрим, как вышеприведенная модель и туннелирование через локализованные состояния в матрице позволяют объяснить особенности магнитосопротивления, наблюдаемые экспериментально.

1) Увеличение  $|JMR|$  в структурах с меньшими концентрациями гранул по сравнению с  $|JMR|$  структур, находящихся вблизи перколяционного порога. Этот эффект наблюдается при  $T = 77$  К в диапазоне концентраций  $x = 42\text{--}62$  at.% (рис. 6). В [7] исследовалась зависимость магнитосопротивления туннельного канала (tunneling magnetoresistance)  $TMR = -JMR/(1 + JMR)$  от величины коэффициента  $s$ - $s$ -туннелирования  $t_{01}$ . Рассматривался случай, когда TMR определяется разностью между состоянием, в котором спины контактов антипараллельны ( $H = 0$ ), и состоянием, в котором спины контактов параллельны ( $H \gg 0$ ). С учетом зонной структуры материала контактов для электродов Co на основе формул (7)–(9) в [7] найдено, что TMR резко понижается при переходе от металлического режима к режиму туннелирования. После достижения минимума TMR, который имеет место в случае одноатомной изолирующей прослойки между ферромагнитными металлами, при дальнейшем уменьшении  $t_{01}$  наблюдается рост TMR. По порядку величины рост TMR соответствует росту магнитосопротивления  $|JMR|$  в гранулированных структурах при уменьшении концентрации металлической фазы в диапазоне концентраций 42–62 at.%, поскольку увеличение длины туннельного канала между частицами растёт при уменьшении концентрации гранул.

2) Насыщение JMR в больших полях в структурах, находящихся вблизи перколяционного порога, и отсутствие насыщения JMR в структурах с малыми концентрациями гранул (рис. 5). В [26] отсутствие насыщения, которое проявляется как логарифмическая функция магнитосопротивления в сильных магнитных полях, связывается с широким разбросом форм несферических гранул нанокompозита (от сильно вытянутых до сплюснутых). Согласно предположению, выдвинутому в [26], структуры, находящиеся в области порога перколяции, и структуры с малыми концентрациями металлической фазы должны иметь разные формы гранул. Это должно проявляться в особенностях магнитосопротивления в сильных магнитных полях. Рассмотрим магнитные поля, действующие на гранулу. Спин  $S$  гранулы (Co, Nb, Ta) формируется  $d$ -электронами внешних оболочек атомов металлов. Внутреннее магнитное поле  $\mathbf{H}^{(0)}$ , действующее на спины  $d$ -электронов гранул, будет складываться из внешнего поля  $\mathbf{H}$  и поля  $\mathbf{H}^{(gr)}$ , определяемого гранулированной структурой:  $\mathbf{H}^{(0)} = \mathbf{H} + \mathbf{H}^{(gr)}$ . Поле  $\mathbf{H}^{(gr)}$  формируется полем взаимодействия между гранулами  $\mathbf{H}^{(int)}$ , полем анизотропии формы гранул  $\mathbf{H}^{(a)}$  и полем взаимодействия между спинами  $d$ -электронов гранулы и спинами примесей в

матрице  $\mathbf{H}^{(loc)}$

$$\mathbf{H}^{(gr)} = \mathbf{H}^{(int)} + \mathbf{H}^{(a)} + \mathbf{H}^{(loc)}. \quad (11)$$

Размагничивающее поле гранул  $\mathbf{H}^{(a)}$  связано с намагниченностью гранул  $4\pi\mathbf{M}^{(gr)}$  соотношением  $\mathbf{H}^{(a)} = 4\pi N\mathbf{M}^{(gr)}$ , где  $N$  — тензор размагничивающих коэффициентов [27]. По порядку величины это поле не должно превышать значения намагниченности  $4\pi\mathbf{M}^{(gr)}$ , которая в случае гранул (Co, Nb, Ta) меньше 17.9 kGs (намагниченность кобальта). Поскольку в [26] логарифмическая зависимость магнитосопротивления от поля  $H$  наблюдалась в магнитных полях, значительно превышающих  $4\pi\mathbf{M}^{(gr)}$ , анизотропия формы гранул не может быть причиной логарифмической зависимости (отсутствия насыщения) магнитосопротивления в исследованных гранулированных структурах. Кроме того, экспериментально не подтверждается, что нанокompоненты с разными концентрациями металлической фазы имеют разные формы гранул.

Изложенная выше модель позволяет объяснить, почему присутствие локализованных состояний в матрице может приводить к отсутствию эффекта насыщения магнитосопротивления в гранулированных структурах в сильных магнитных полях. При уменьшении концентрации металлической фазы увеличивается число локализованных состояний  $\langle n \rangle$ , через которые осуществляется спин-зависимое резонансное туннелирование между гранулами (рис. 4). Спин-ориентированный электронный транспорт зависит от величины обменного расщепления  $\Delta E$  уровней локализованных состояний, через которые туннелирует электрон, и от взаимного расположения спинов двух соседних гранул, которое определяется корреляционной функцией (10). Если в гранулированной структуре величина расщепления  $\Delta E > kT$  и корреляционная функция спинов гранул не изменяется (что происходит в случае, когда магнитное поле велико и спины гранул параллельны), то магнитное поле не влияет на поляризацию локализованного состояния и магнитосопротивление. В этом случае, после того как спины гранул станут параллельными, магнитосопротивление не будет изменяться и возникает эффект насыщения. Если концентрация гранул мала, то при большой длине канала проводимости между гранулами в цепочке локализованных состояний присутствуют слабо-расщепленные уровни с  $\Delta E \ll kT$ , находящиеся далеко от гранул. Магнитное поле  $H$  при увеличении от нуля до  $(kT - \Delta E)/\mu_B$  будет приводить к постепенной поляризации слабо-расщепленных локализованных состояний и к увеличению проводимости туннельных каналов. Это проявляется в отсутствии насыщения магнитосопротивления в структурах с малыми концентрациями гранул при  $H < (kT - \Delta E)/\mu_B$ .

Следует также отметить, что обменное расщепление уровней локализованных состояний приводит не только к особенностям магнитосопротивления, но и к значительному увеличению параметра релаксации спиновых возбуждений в гранулированных структурах [28].

3) Увеличение температурных изменений магнитосопротивления с уменьшением концентрации гранул. Этот эффект виден при сравнении концентрационных зависимостей  $\chi$  при  $T = 77$  и  $295$  К (рис. 6). Согласно вышеприведенной модели, температура влияет на проводимость  $\sigma^{(gr)\nu}$  канала с поляризацией  $\nu$  между гранулами через: 1) изменение корреляционной функции спинов двух соседних гранул (10), которые входят в функции Грина  $g_{00}^{\nu\nu}$ ,  $g_{11}^{\nu\nu}$  в (7); 2) неупругое рассеяние спина электрона, туннелирующего по цепочке локализованных состояний между гранулами. В последнем случае происходит взаимодействие туннельных каналов с разными поляризациями, и в (7) необходимо учитывать матрицы перехода  $T_{10}^{\nu}$ ,  $T_{01}^{\nu}$  с  $\nu = \uparrow$  и  $\downarrow$ . Увеличение длины цепочки локализованных состояний, по которым туннелирует электрон, приводит к росту вероятности неупругого рассеяния спина электрона. Поскольку  $|JMR|$  увеличивается при понижении концентрации гранул  $x$  (см. выше), рост вероятности неупругого рассеяния спина при увеличении длины канала при отличной от нуля температуре должен приводить к характерной концентрационной зависимости: увеличению магнитосопротивления при понижении концентрации от порога перколяции  $x_{\text{perc}}$  до определенной концентрации  $x_m$ , достижению максимума при концентрации  $x_m$  и убыванию магнитосопротивления при уменьшении  $x$  от  $x_m$  до нуля. Такая концентрационная зависимость наблюдалась в [29] на гранулированных структурах  $\alpha$ -SiO<sub>2</sub>(Ni). При концентрации  $x_m$  действия двух факторов (концентрационное увеличение  $|JMR|$  и рост вероятности неупругого рассеяния спина электрона при увеличении температуры) взаимно уравновешиваются. При понижении температуры магнитосопротивление растет и положение максимума  $x_m$  должно сдвигаться в сторону меньших  $x$ .

В эксперименте мы исследовали пленки в суперпарамагнитном состоянии. Если внешнее магнитное поле  $H$  больше поля  $H^{(\text{int})}$ , определяемого обменным и диполь-дипольным взаимодействиями между гранулами, то в первом приближении по отношению этих полей при  $T > T_M$  корреляционные функции спинов гранул (10) являются однотипными для всех концентраций и температурно-концентрационные зависимости будут определяться особенностями, задаваемыми неупругим спиновым рассеянием в туннельных каналах. К таким особенностям можно отнести упомянутые выше наличие максимума магнитосопротивления при  $x = x_m$ , увеличение температурных изменений магнитосопротивления при понижении  $x$ , сдвиг  $x_m$  в сторону меньших  $x$  при понижении температуры. Эти эффекты наблюдались в эксперименте, что свидетельствует о том, что электронный транспорт в исследованных структурах осуществляется посредством неупругого резонансного туннелирования через цепочку локализованных состояний между гранулами.

4) Незначительное изменение магнитосопротивления в малых полях (рис. 5). Анизотропия формы гранул, обменное взаимодействие между

спином гранулы и спинами примесей в матрице, взаимодействие между гранулами (поле  $\mathbf{H}^{(\text{int})}$ ) приводят к отличному от нуля внутреннему полю  $\mathbf{H}^{(\text{gr})}$  (11), определяемому гранулированной структурой. Оно суммируется с внешним полем  $\mathbf{H}$ , и для его учета в вышеприведенной модели в корреляционных функциях (10) необходимо сделать замену  $H \rightarrow H^{(0)} = |\mathbf{H} + \mathbf{H}^{(\text{gr})}|$ . Поскольку ориентация внутреннего поля является произвольной, величина поля  $H^{(0)}$  при  $H < H^{(\text{gr})}$  в основном определяется полем  $H^{(\text{gr})}$ , что приводит к незначительному изменению корреляционной функции (10) и проводимости (7). Из экспериментальных зависимостей JMR, приведенных на рис. 5, можно определить, что  $H^{(\text{gr})} \approx 2$  кОе.

5) Действие отжига, приводящее к увеличению удельного электрического сопротивления при малых концентрациях гранул и к уменьшению сопротивления при концентрациях гранул в области перколяционного порога. Влияние отжига на сопротивление гранулированных структур (рис. 2) может быть объяснено в рамках развитой выше модели. В первом приближении гранулированную структуру можно рассматривать как перколяционную систему, которая в зависимости от проводимости кластеров гранул  $\sigma_{\text{Me}}$  и матрицы  $\sigma_b$  может быть описана двумя предельными моделями. В первой модели рассматривается случай  $\sigma_b = 0$  (ant limit), во второй —  $\sigma_{\text{Me}} = \infty$  (termite limit) [18,30,31]. Для перколяционных систем характерны существование определенного значения перколяционного порога  $x_{\text{perc}}$  и скейлинговая зависимость общей проводимости от концентрации металлической фазы  $\sigma \sim (x - x_{\text{perc}})^{\mu}$ . Если отношение проводимостей  $\sigma_{\text{Me}}/\sigma_b = \rho_b/\rho_{\text{Me}}$  отлично от бесконечного значения и нуля, то не существует точной величины перколяционного порога. Он размывается, и можно говорить лишь об области порога протекания [30,31]. Область порога протекания можно определить по изменению характера температурных зависимостей проводимости — переходу от неметаллического к металлическому типу. Для неотожженных образцов  $\alpha$ -SiO<sub>2</sub>(Co, Nb, Ta) (рис. 3) эта область приближенно характеризуется концентрациями гранул 57–62 at.%.

При отжиге гранулированных структур происходят два процесса.

а) Отжиг уменьшает количество дефектов в матрице, что ведет к уменьшению количества локализованных состояний в туннельных каналах между гранулами и к падению прозрачности туннельного барьера. Проводимость матрицы  $\sigma_b$ , равная  $\sigma^{(gr)}$  в формуле (9), уменьшается.

б) При отжиге происходит структурная релаксация металлической фазы. Гранулы могут укрупняться и сливаться между собой. Это приводит к увеличению проводимости кластеров  $\sigma_{\text{Me}}$ .

При малых концентрациях гранул превалирует первый механизм и отжиг ведет к увеличению общего удельного сопротивления гранулированных структур

$a\text{-SiO}_2(\text{Co}, \text{Nb}, \text{Ta})$  (рис. 2). При больших концентрациях наблюдается второй процесс, который проявляется в уменьшении сопротивления.  $S$ -образный характер кривой сопротивления для отожженных образцов указывает на то, что отожженные гранулированные структуры приближаются к пределу *termite limit* с  $\sigma_{\text{Me}} = \infty$ .

В заключение следует отметить, что применение приближения  $s-s$ -туннелирования для интерпретации величины магнитосопротивления в исследуемом композите является оправданным, поскольку аморфный металлургический сплав  $\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2$  имеет „близкое к нулю“ значение магнитострикции. В композитах  $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_n)_{1-x}$  металлические гранулы обладают магнитострикцией  $\lambda \approx 30 \cdot 10^{-6}$ , что свидетельствует о влиянии магнитного поля на  $d$ -электроны. В этом случае к  $s-s$ -туннелированию между гранулами примешивается определенная часть  $s-d$ -туннелирования, что дает увеличение магнитосопротивления почти на порядок [32].

Таким образом, на основании вышеизложенного можно сделать следующие выводы.

1) Наличие слаборасщепленных локализованных состояний в канале туннельной проводимости между гранулами приводит к отсутствию насыщения магнитосопротивления в сильных магнитных полях в гранулированных структурах с малыми концентрациями гранул.

2) Увеличение длины цепочки локализованных состояний между гранулами, по которым туннелирует электрон, приводит: а) к уменьшению коэффициента  $s-s$ -туннелирования, что ведет к увеличению магнитосопротивления  $|\text{JMR}|$ ; б) к росту вероятности неупругого рассеяния спина туннелирующего электрона, которое понижает  $|\text{JMR}|$ . Действие этих двух факторов в гранулированных структурах, находящихся в суперпарамагнитном состоянии, дает температурно-концентрационные зависимости, имеющие следующие характерные черты: наличие максимума магнитосопротивления при определенной концентрации гранул  $x_m$ ; увеличение температурных изменений магнитосопротивления при понижении  $x$ , где  $x < x_m$ ; сдвиг  $x_m$  в сторону меньших концентраций при понижении температуры.

3) Проявление характерных особенностей концентрационных зависимостей магнитосопротивления при разных температурах и отсутствии насыщения магнитосопротивления в сильных магнитных полях в исследованных гранулированных пленках  $a\text{-SiO}_2(\text{Co}, \text{Nb}, \text{Ta})$  свидетельствуют о том, что электронный транспорт осуществляется посредством неупругого резонансного туннелирования через цепочку локализованных состояний в матрице  $a\text{-SiO}_2$  между гранулами. Не исключая того, что температурные зависимости проводимости в гранулированных структурах могут формироваться согласно моделям [13,14], из анализа зависимостей магнитосопротивления можно заключить, что определенный вклад в зависимости проводимости от температуры в исследованных пленках вносит неупругое резонансное туннелирование через локализованные состояния между гранулами.

## Список литературы

- [1] S. Mitani, K. Takanashi, K. Yakushiji, H. Fujimori. *J. Appl. Phys.* **83**, 11, 6524 (1998).
- [2] Б.А. Аронзон, А.Б. Грановский, Д.Ю. Ковалев, Е.З. Мейлихов, В.В. Рыльков, М.В. Седова. *Письма в ЖЭТФ* **71**, 11, 687 (2000).
- [3] Б.А. Аронзон, Д.Ю. Ковалев, А.Н. Лагарьков, Е.З. Мейлихов, В.В. Рыльков, М.А. Седова, Н. Негре, М. Гойран, Дж. Леотин. *Письма в ЖЭТФ* **70**, 2, 87 (1999).
- [4] Е.З. Мейлихов. *ЖЭТФ* **117**, 6, 1136 (2000).
- [5] Л.И. Глазман, К.А. Матвеев. *ЖЭТФ* **94**, 6, 332 (1988).
- [6] Л.И. Глазман, Р.И. Шехтер. *ЖЭТФ* **94**, 1, 292 (1988).
- [7] J. Mathon. *Phys. Rev.* **B56**, 18, 11 810 (1997).
- [8] J.S. Moodera, G. Mathon. *J. Magn. Mater.* **200**, 248 (1999).
- [9] Ping Sheng, B. Abeles, Y. Arie. *Phys. Rev. Lett.* **31**, 1, 44 (1973).
- [10] Ping Sheng. *Phil. Mag.* **B65**, 3, 357 (1992).
- [11] A. Möbius, M. Richter, B. Drittler. *Phys. Rev.* **B45**, 20, 11 568 (1992).
- [12] E. Cuevas, M. Ortuño, J. Ruiz. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 12, 1871 (1993).
- [13] Д.А. Закей, И.В. Рожанский, И.П. Смирнова, С.А. Гуревич. *ЖЭТФ* **118**, 3(9), 637 (2000).
- [14] Е.З. Мейлихов. *ЖЭТФ* **115**, 4, 1484 (1999).
- [15] S.V. Vyshenski. *Письма в ЖЭТФ* **61**, 1–2, 105 (1995).
- [16] Л.В. Литвин, В.А. Колосанов, Д.Г. Бакшеев, В.А. Ткаченко, А.Л. Асеев. *Письма в ЖЭТФ* **72**, 5, 388 (2000).
- [17] А.В. Тартаковский, М.В. Фистуль, М.Э. Райх, И.М. Рузин. *ФТП* **21**, 4, 603 (1987).
- [18] Б.И. Шкловский, А.Л. Эфрос. *Электронные свойства легированных полупроводников*. Наука, М. (1979). 416 с.
- [19] Л.В. Луцев, Т.К. Звонарева, В.М. Лебедев. *Письма в ЖТФ* **27**, 15, 84 (2001).
- [20] E.Yu. Tsymbal, D.G. Pettifor. *Phys. Rev.* **B58**, 1, 432 (1998).
- [21] A.M. Bratkovsky. *Phys. Rev.* **B56**, 5, 2344 (1997).
- [22] А.В. Ведяев, Д.А. Багрец, А.А. Багрец, Б. Диени. *Сб. трудов XVII Междунар. шк.-сем. „Новые магнитные материалы микроэлектроники“*. М. (2000). С. 622.
- [23] А.С. Давыдов. *Квантовая механика*. Наука, М. (1973). 704 с.
- [24] E.Yu. Tsymbal, D.G. Pettifor. *J. Phys.: Cond. Matter* **9**, 30, L411 (1997).
- [25] J.S. Helman, B. Abeles. *Phys. Rev. Lett.* **37**, 21, 1429 (1976).
- [26] Е.З. Мейлихов, Б. Раке, Х. Ракото. *ЖЭТФ* **119**, 5, 937 (2001).
- [27] А.Г. Гуревич, Г.А. Мелков. *Магнитные колебания и волны*. Наука, М. (1994).
- [28] Л.В. Луцев. *ФТТ* **44**, 1 95 (2002).
- [29] J.I. Gittleman, Y. Goldstein, S. Bozowski. *Phys. Rev.* **B5**, 9, 3609 (1972).
- [30] A. Bunde, A. Coniglio, D.C. Hong, H.E. Stanley. *J. Phys. A: Math. Gen.* **18**, L137 (1985).
- [31] D.C. Hong, H.E. Stanley, A. Coniglio, A. Bunde. *Phys. Rev.* **B33**, 7, 4564 (1986).
- [32] Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, O.V. Stognei, I.V. Zolotukhin, P.V. Neretin. *Mat. Sci. Eng.* **A304–A306**, 941 (2001).