

01,04

Логарифмическая температурная зависимость электросопротивления нанокompозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{Al}-\text{O})_{100-x}$

© Ю.О. Михайловский¹, В.Н. Прудников¹, В.В. Рыльков², К.Ю. Черноглазов²,
А.В. Ситников³, Ю.Е. Калинин³, А.Б. Грановский^{1,3}

¹ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
Москва, Россия

² Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“,
Москва, Россия

³ Воронежский государственный технический университет,
Воронеж, Россия

E-mail: granov@magn.ru

(Поступила в Редакцию 11 августа 2015 г.)

В диапазоне температур 4.2–300 К исследована температурная зависимость проводимости $\sigma(T)$ пленок нанокompозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{Al}-\text{O})_{100-x}$ для различных концентраций аморфного ферромагнитного металла x ($56 > x > 30$). Показано, что для концентраций $56 > x > 49$ для проводимости выполняется логарифмический закон $\sigma(T) = A(1 + \alpha \ln T)$, где параметры A и α зависят от концентрации. Данная логарифмическая зависимость согласно теории Ефетова и др. связывается с особенностями кулоновского взаимодействия в наногранулированных сплавах при межгранульном туннелировании в переходной области концентраций от металлической проводимости к диэлектрическому режиму. Сопоставление теории с экспериментом привело к согласию, но только на качественном уровне. Обсуждаются причины количественного рассогласования. Сопротивление образцов с концентрациями, лежащими в диапазоне $49 > x > 30$, следует „закону $1/2^x$ “.

Работа выполнена с использованием оборудования, приобретенного за счет средств программы развития Московского университета.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 15-12-20002) и поддержано РФФИ (гранты № 14-02-31134, 14-02-31394).

Обнаружение логарифмической зависимости проводимости от температуры вида

$$\sigma(T) = A(1 + \alpha \ln T) \quad (1)$$

в наногранулированных пленках металл–диэлектрик при концентрации металла, превышающей порог перколяции, т.е. в „металлическом“ режиме переноса [1–5], вызвало значительный интерес, так как пленки были достаточно толстыми, чтобы рассматривать эту зависимость как следствие эффектов слабой локализации в двумерных структурах. Интересно, что эта зависимость наблюдалась как в магнитных пленках (например, Ni–SiO₂ [3,5]), так и в пленках, не содержащих ферромагнитные элементы (Al–Ge [4]). В теоретических работах Ефетова и др. (см. [1] и обзор [2]) показано, что такая зависимость может при не очень низких температурах быть следствием кулоновского взаимодействия в наногранулированных металлических сплавах, и получено выражение

$$\sigma(T) = \sigma_0 \left(1 + \alpha_c \ln \frac{T}{gE_c} \right) = \sigma_0 \left(1 + \alpha_c \ln \frac{T}{T_0} \right), \quad (2)$$

где $g = G/(2 \frac{e^2}{h})$ — нормированный кондактанс сплава G , E_c — кулоновская энергия при добавлении одного

электрона к грануле, $T_0 = gE_c/k_B$,

$$\alpha_c = \frac{1}{2\pi g d}, \quad (3)$$

где $2d$ — число контактов данной гранулы с ближайшими. Считается, что теория справедлива при $g \gg 1$ или, по крайней мере, при $g \geq 1$, и зависимость (2) должна выполняться независимо от того, является ли гранула аморфной или кристаллической в трехмерных и двумерных неупорядоченных системах. Насколько известно авторам, количественное сопоставление теории Ефетова и др. [1,2] с экспериментом выполнено не было. Это и является целью настоящей работы.

Исследованные нанокompозиты были получены ионно-лучевым распылением составных мишеней, представляющих собой металлическую основу сплава $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20}$, на поверхности которой было размещено несколько пластинок оксида алюминия. Все особенности данного метода, позволяющего в одном технологическом цикле получать композиционные системы с непрерывно изменяющимся соотношением металлической и диэлектрической фаз в широких пределах в зависимости от положения подложки относительно мишени, приведены в работах [6,7]. Осаждение композита производилось на ситалловые подложки, температура которых в процессе напыления

Значения параметров в соотношениях (1) и (2), определенные с помощью экспериментальных данных

x	$A, (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$	$\alpha A, (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$	α	α_c	$\ln T_0$
56	328.1 ± 0.2	32.90 ± 0.04	0.10	0.08	2.3
53	63.6 ± 0.2	26.49 ± 0.02	0.41	0.20	2.4
49	-31.2 ± 0.3	28.58 ± 0.06	-0.91	-	-

не превышала 393 К. Толщина полученных образцов измерялась интерференционным методом и составляла около $2.7 \mu\text{m}$. Элементный состав пленок определялся с использованием энергодисперсионной рентгеновской приставки Oxford INCA Energy 250 на сканирующем электронном микроскопе JEOL JSM-6380 LV. Согласно данным электронной микроскопии и рентгеновской дифракции, форма гранул близка к сферической, их размер не превышает 2–3 нм и даже при большом содержании металла ($x = 56$) гранулы разделены тонкой диэлектрической прослойкой Al–O толщиной около 1.0 нм.

На рис. 1 приведены полученные температурные зависимости проводимости нанокомпозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{Al}-\text{O})_{100-x}$ для всех исследуемых составов. Для наногранулированных пленок предложено несколько типов температурных зависимостей проводимости (см. обзор в [7]), наиболее известные из которых

$$\sigma \sim \exp[-(T_0/T)^{1/2}] \quad (\text{„закон } 1/2^{\text{“}})$$

и

$$\sigma \sim \exp[-(T_0/T)^{1/4}] \quad (\text{„закон } 1/4^{\text{“}}).$$

Результаты анализа показали, что образцам с концентрациями $56 > x > 49$ соответствует логарифмическая зависимость (1) (рис. 2, a), а образцам с концентрациями $49 > x > 30$ — „закон $1/2^{\text{“}}$ (рис. 2, b). При этом образец с $x = 49$ является переходным: при уменьшении температуры от 300 до 20 К (отвечает увеличению сопротивления образца в 2.5 раза) проводимость следует логарифмической зависимости (1), однако ниже 20 К эта

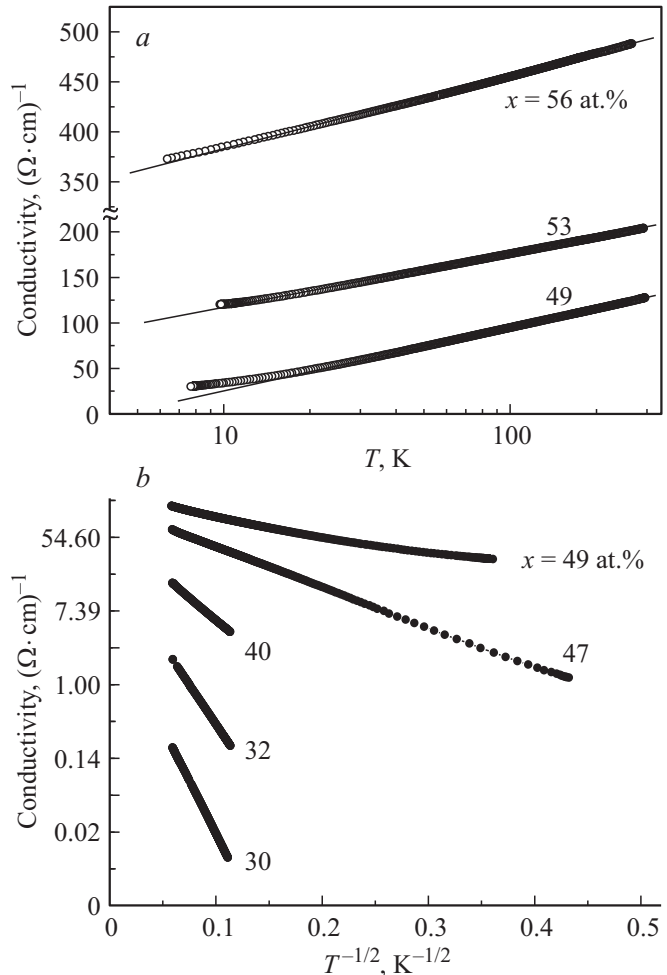


Рис. 2. a) Температурная зависимость проводимости для образцов с $56 > x > 49$ в координатах $\sigma - \ln T$. b) Зависимость проводимости для образцов с $49 > x > 30$ от температуры в координатах $\ln \sigma - T^{-1/2}$.

зависимость выполаживается и заметно отклоняется от логарифмической.

В таблице представлены данные для коэффициентов A и α для образцов $56 > x > 49$, проводимость которых описывается зависимостью (1). Согласно (1)–(3),

$$A = \sigma_0(1 - \alpha_c \ln T_0),$$

$$\alpha = \frac{\alpha_c}{1 - \alpha_c \ln T_0}, \quad \alpha_c = \alpha A / \sigma_0. \quad (4)$$

Поэтому в таблице также приведены определенные согласно выражению (4) значения параметра α_c и $\ln T_0$.

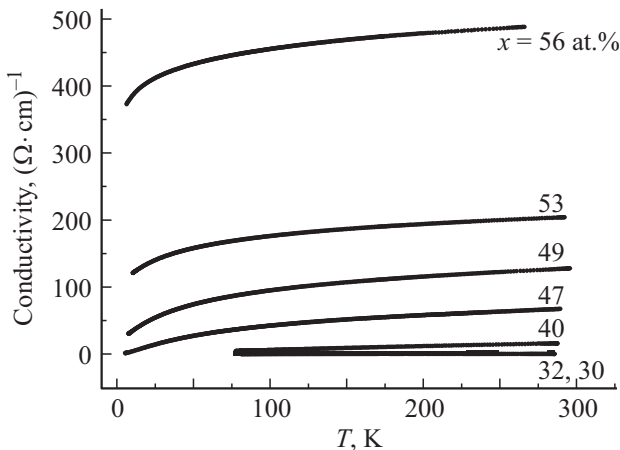


Рис. 1. Зависимость проводимости образцов с концентрацией металла $56 > x > 30$ от температуры.

Значения параметра σ_0 при этом взяты при 11 К (рис. 1). При $x = 49$ значения A и α отрицательны, поэтому для данного состава теория [1,2] заведомо неприменима, так как этот сплав не обладает металлическим кондактансом.

Как видно из таблицы, для сплавов с $x = 56$ и 53 эксперимент дает малые значения α_c , что соответствует теории. Однако рассмотрим, насколько полученные значения самосогласованы. Для этого оценим туннельный кондактанс сплава как

$$G \approx \frac{\sigma_0}{s/D^2}, \quad (5)$$

где D — диаметр гранул, s — зазор между ними (ширина туннельного барьера). Принимая для сплава с $x = 56$ типичные значения $D = 3$ nm, $s = 1$ nm, получаем, что его нормированный кондактанс $g = 0.7$, т.е. заведомо меньше единицы, при этом если положить $d = 3$, то, согласно выражению (3), получаем $\alpha_c = 0.075$. Такое хорошее согласие с экспериментом, согласно которому $\alpha_c = 0.08$, нельзя тем не менее считать количественным, так как кондактанс меньше единицы. Возможно, ток течет через более мелкие гранулы, как это недавно было показано в [8], и существует неопределенность в выборе параметра d (см. обсуждение в [1]). Для образца с $x = 53$ кондактанс в ~ 4 раза меньше, и аналогичный расчет дает $\alpha_c = 0.3$, тогда как в эксперименте $\alpha_c = 0.2$ (см. таблицу). Следует также отметить, что расчет туннельного кондактанса в предположении, что туннелирование осуществляется через агломераты гранул, как это сделано в [4], приводит к значительному рассогласованию.

Найдем теперь параметр g из экспериментальных данных по $\ln T_0$. Согласно [7],

$$E_c = \frac{e^2 s}{\epsilon D^2 (1/2 + s/D)}, \quad (6)$$

где диэлектрическую проницаемость барьера Al–O примем равной $\epsilon = 4.5$. Тогда при принятых значениях параметров $E_c \approx 0.04$ eV, $\ln g E_c / k_B = 2.3$ (см. таблицу) величина нормированного кондактанса становится более чем в 12 раз меньше найденной из сопротивления (5). Такое расхождение, скорее всего, связано с завышенными значениями кулоновской энергии. Известно, что использование выражения (6) дает на один-два порядка отличающиеся от эксперимента значения E_c и в случае сплавов, подчиняющихся „закону $1/2^c$ “ [7]. Когда гранулы находятся в контакте, то экранировка кулоновского взаимодействия становится более существенной [9]. В работе [9], например, определенное значение кулоновской энергии при близких параметрах гранул на порядок меньше. И тогда значения кондактанса, найденного двумя способами, согласуются по порядку величины. Тем не менее они остаются по-прежнему меньше единицы, что, строго говоря, не должно было приводить к наблюдаемой логарифмической зависимости проводимости.

Таким образом, хотя логарифмическая температурная зависимость проводимости действительно наблюдается вблизи перколяционного перехода на металлической его стороне в трехмерных образцах нанокompозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{Al}-\text{O})_{100-x}$ с аморфным материалом гранул, полученные в рамках теории Ефетова и др. [1,2] параметры, определяющие электронный перенос, имеют исключительно качественный характер.

Список литературы

- [1] K.B. Efetov, A. Tschersich. Phys. Rev. B **67**, 174 205 (2003).
- [2] I.S. Beloborodov, A.V. Lopatin, V.M. Vinokur, K.B. Efetov. Rev. Mod. Phys. **79**, 469 (2007).
- [3] J.C. Denardin, M. Knobel, X.X. Zhang, A.B. Pakhomov. J. Magn. Magn. Mater. **262**, 15 (2003).
- [4] A. Gerber, A. Milner, G. Deutscher, M. Karpovsky, A. Gladkikh. Phys. Rev. Lett. **78**, 4277 (1997).
- [5] D. Bartov, A. Segal, M. Karpovski, A. Gerber. Phys. Rev. B **90**, 144 423 (2014).
- [6] Ю.Е. Калинин, А.Н. Ремизов, А.В. Ситников. ФТТ **46**, 2076 (2004).
- [7] С.А. Гриднев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников. Нелинейные явления в нано- и микрогетерогенных системах. БИНОМ, Лаборатория знаний, М. (2012). 352 с.
- [8] M.G. del Muro, Z. Konstantinovic, X. Battle, A. Labarto. J. Phys. D **46**, 495 304 (2013).
- [9] M.A. Pankov, B.A. Aronzon, V.V. Rylkov, A.V. Davydov, V.V. Tugushev, S. Caprara, L.A. Likhachev, E.M. Pashaev, M.A. Chuev, E. Lähderanta, A.S. Vedeneev, A.S. Bugaev. Eur. Phys. J. B **85**, 206 (2012).