

# Инверсное магнитосопротивление в магнитных гранулированных композитах $(\text{FeCoV})-(\text{Al}_2\text{O}_3)$

© А.С. Андреевко, В.А. Березовец\*, А.Б. Грановский, И.В. Золотухин\*\*, М. Инуе\*\*\*, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников\*\*, О.В. Стогней\*\*, Т. Палевский\*\*\*\*

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119992 Москва, Россия

\* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\*\* Воронежский государственный технический университет,  
394026 Воронеж, Россия

\*\*\* Университет технологии Тояхаши,  
Тояхаши, 441-8580, Япония

\*\*\*\* Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур,  
53-421 Вроцлав, Польша

(Поступила в Редакцию 16 января 2003 г.)

Исследованы магнитосопротивление, намагниченность и микроструктура гранулированных композитов с общей формулой  $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{V}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$  при содержании аморфной металлической компоненты выше и ниже порога перколяции ( $x \approx 43$ ). Поперечное магнитосопротивление композитов при низких температурах отрицательно при  $x = 41$  или практически равно нулю при  $x = 49$ . При содержании металла меньше, чем порог перколяции ( $x = 31$ ), наблюдалось значительное (7–8%) положительное магнитосопротивление, которое достигается в магнитных полях около 17 кОе. Обсуждаются возможные механизмы возникновения инверсного (положительного) магнитосопротивления.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 02-02-16102, 03-02-96436, 03-02-16127), программы „Университеты России“ и Министерства образования, науки, спорта и культуры Японии (грант № 14-205045).

Поперечное магнитосопротивление (МС) кристаллических и аморфных ферромагнетиков, магнитных мультислоев и гранулированных пленок, как правило, отрицательно, т.е. сопротивление  $\rho$  уменьшается при намагничивании образца в направлении, перпендикулярном току. Для однородных ферромагнетиков это является следствием спин-орбитального взаимодействия, приводящего к спонтанной анизотропии МС [1]. Для металлических мультислоев и гранулированных сплавов типа „металл–металл“ обнаруженное гигантское МС (см., например, [2]) является следствием спин-зависящего рассеяния и также отрицательно во всех случаях, когда ферромагнитные слои или гранулы изготовлены из одного и того же магнетика. В том случае, когда слои изготовлены из разных ферромагнетиков, при определенных значениях параметров спин-зависящего рассеяния возможно и положительное МС, которое было названо инверсным [3]. Один из возможных механизмов инверсного МС для металлических гранулированных сплавов, связанный с наличием двух  $s$ - и  $d$ -токовых каналов для каждого индекса спина, был предложен в [4].

В системах с туннельными контактами, будь то сэндвичи, мультислои или гранулированные сплавы „металл– диэлектрик“, имеет место аналогичная ситуация. А именно туннельное МС может быть положительно только при неэквивалентности ферромагнетиков, между которыми происходит туннелирование, причем либо они должны обладать спиновой поляризацией разного знака, либо содержать примеси  $3d$ -элементов

вблизи или на поверхности одного из слоев [5]. Надо отметить также, что рассеяние на доменных стенках, в том числе и наноразмера [6], или прохождение спин–поляризованного электрона через нанокontakt [7] тоже приводит к отрицательному МС.

В работе [8] обнаружено положительное поперечное МС для аморфных сплавов на основе Fe, которое не получило адекватного объяснения. Недавно Аронзон и Варфоломеев с соавторами [9,10] нашли положительное МС в гранулированных сплавах Fe–SiO<sub>2</sub> для составов вблизи порога перколяции.

В настоящей работе приводятся результаты исследования электрического сопротивления, поперечного МС, намагниченности и микроструктуры композитов „аморфный ферромагнитный металл–диэлектрик“  $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{V}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ . Для состава до порога перколяции в диэлектрической фазе в магнитных полях, меньших поля насыщения, МС положительно и его можно назвать инверсным МС по аналогии с инверсным МС в металлических мультислоях [3].

## 1. Методика эксперимента

Тонкопленочные композиты с общей формулой  $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{V}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$  были получены методом ионно-лучевого напыления на ситалловую подложку. Применение комбинированных мишеней металлического сплава, на поверхности которого располагались пла-

стинки оксида алюминия на разном расстоянии друг от друга, позволило в едином технологическом цикле получить серию образцов сплавов с концентрацией металла от 25 до 64 at.%. Методика получения образцов подробно описана в работе [11]. Выбор данного состава определяется тем, что спиновая поляризация сплава FeCo, больше чем у Fe и Co, а с использованием Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в качестве диэлектрической компоненты в системах с туннельными контактами позволяет достичь низкого туннельного барьера и высоких значений туннельного МС [12]. Использование высокорезистивных аморфных металлов вместо кристаллических, как ожидается, должно способствовать инжекции электронов в диэлектрик.

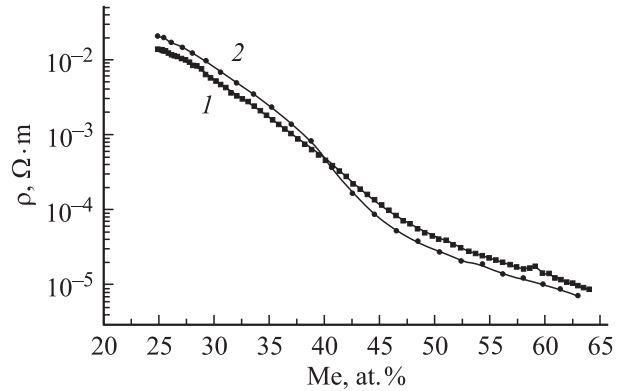
Толщина полученных пленок составляла около 10 μm. Электронно-микроскопические исследования структуры полученных образцов показали, что они состоят из металлических гранул, случайным образом распределенных в диэлектрической матрице Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Средний размер гранул составлял 2–5 nm. Следует отметить, что полученные в процессе напыления пленки металлические гранулы не являются абсолютно изолированными друг от друга (даже в случае высокой концентрации диэлектрика), а образуют небольшие конгломераты и цепочки в плоскости пленки.

Измерения поперечного МС (магнитное поле прикладывалось перпендикулярно плоскости пленки) проводились стандартным четырехзондовым методом при температуре  $T = 4.2$  К в полях до 140 кОе. Измерения проводились как на постоянном, так и на переменном токе частотой 7 и 53.5 Hz.

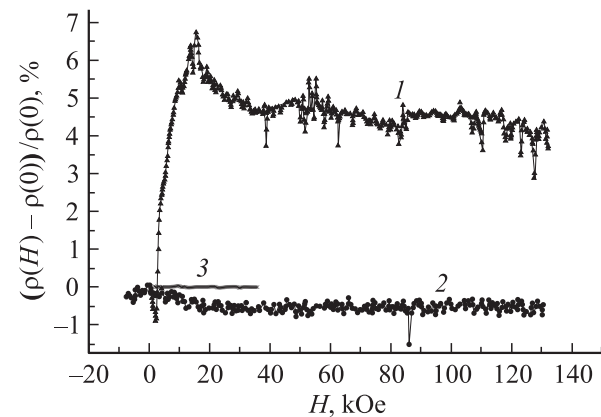
Измерения намагниченности проводились при температуре 4.2 К на емкостном магнитометре в полях до 140 кОе. Для сопоставления с данными по магнитосопротивлению и с целью исключить влияние размагничивающего фактора измерения проводились в той же геометрии, т.е. поле прикладывалось перпендикулярно плоскости образца.

## 2. Результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены зависимости удельного электрического сопротивления  $\rho$  от состава, измеренные при комнатной температуре (кривая 1). Из рисунка видно, что при изменении содержания металла от 25 до 64 at.% проводимость системы немонотонно изменяется на 4 порядка величины. Сопротивление гранулированного сплава при комнатной температуре с  $x = 64$  примерно на полтора порядка больше, чем у аморфного сплава Fe<sub>40</sub>Co<sub>40</sub>B<sub>20</sub>, что указывает на важную роль контактов между гранулами. Сильное увеличение удельного электросопротивления с ростом диэлектрической фазы достаточно очевидно, поскольку металлический характер проводимости сменяется на неметаллический. Переход металл-диэлектрик имеет плавный характер и, как известно, порог перколяции трудно определить по одной концентрационной зависимости сопротивления.



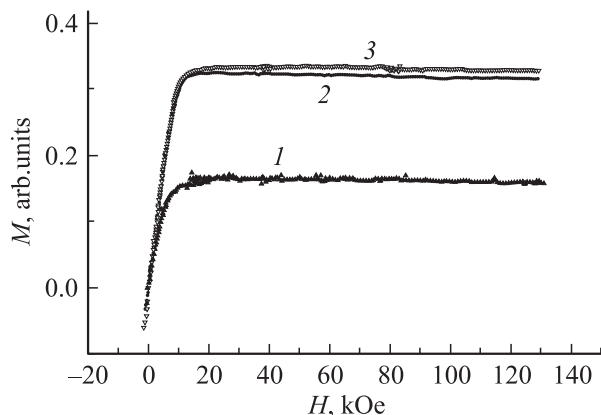
**Рис. 1.** Зависимости удельного электрического сопротивления от атомной доли металла при комнатной температуре композитов  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ , осажденных на неподвижную подложку в исходном состоянии (1), и после отжига в течение 30 min при  $T = 400^\circ\text{C}$  (2).



**Рис. 2.** Относительное изменение удельного электрического сопротивления от напряженности перпендикулярного магнитного поля при температуре  $T = 4.2$  К для  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$  в исходном состоянии при различных значениях  $x$ , at.%. 1 — 31, 2 — 41, 3 — 49.

Для более точного определения порога перколяции композиты подвергались термической обработке при температуре  $400^\circ\text{C}$ . При этом термообработка композитов приводит к увеличению электрического сопротивления сплавов, находящихся до порога перколяции, и к его уменьшению — за порогом перколяции (кривая 2). По точке пересечения концентрационных зависимостей электрического сопротивления композитов в исходном состоянии и термообработанных можно определить порог перколяции, который составил величину  $X \cong 42$  at.%.

На рис. 2 представлены полевые зависимости сопротивления от магнитного поля для трех сплавов с  $x = 31, 41$  и  $49$  при температуре  $T = 4.2$  К. В сплаве с большим содержанием металла  $x = 49$ , т.е. выше порога перколяции  $x > x_c$ , сопротивление практически не зависит от магнитного поля. Это достаточно очевидно, учитывая металлический характер проводимости



**Рис. 3.** Изменение намагниченности от напряженности перпендикулярного магнитного поля при температуре  $T = 4.2$  К для  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$  в исходном состоянии при различных значениях  $x$ , ат.%. 1 — 31, 2 — 41, 3 — 49.

в этом соединении (рис. 1). Для состава вблизи порога перколяции ( $x = 41$ ), но с диэлектрической стороны перехода металл–диэлектрик наблюдается уменьшение сопротивления на 0.7% в поле  $H = 20$  кОе. При дальнейшем увеличении поля сопротивление остается постоянным. Такое отрицательное МС является типичным для систем с туннельными контактами. Несколько меньшие значения туннельного МС, чем, например, в системе Fe–SiO<sub>2</sub> [9] или CoFe–MgF<sub>2</sub> [12], скорее всего, связаны с тем, что гранулы в полученных нами композициях вблизи порога перколяции не являются абсолютно изолированы диэлектрической матрицей, а объединены в кластеры с одной ориентацией магнитного момента. Ниже порога перколяции (сплав с  $x = 31$ ) наблюдается значительное до 6–7% увеличение электросопротивления. Это инверсное МС имеет место при полях, близких к полю насыщения (рис. 3), а при дальнейшем росте поля сопротивление несколько уменьшается. Инверсное МС быстро уменьшается с повышением температуры и практически отсутствует при комнатной температуре. Следует также отметить, что при измерении сопротивления образцов этого состава на частоте 53.5 Hz присутствует мнимая часть импеданса — индуктивность, поэтому зависимости электросопротивления от поля, измеренные на постоянном и переменном токах, несколько отличаются.

Рассмотрим возможные механизмы инверсного МС в исследованной системе гранулированных сплавов. Во-первых, по-видимому, следует исключить из рассмотрения механизмы, связанные с рассеянием внутри гранул: анизотропное МС, которое для поперечной геометрии отрицательно; лоренцевский вклад, который заведомо мал при малых длинах свободного пробега; рассеяние на доменных стенках. Это сразу следует из сравнения МС для образцов с  $x = 31$  и 49. Во-вторых, магнитное поле подавляет эффекты квантовой интерференции, которые могут быть весьма существенны при низких

температурах вблизи порога перколяции [13], и поэтому слабая локализация может приводить к отрицательному МС. Кроме того, эффект достаточно большой (7–8%), чтобы его можно было связать с процессами квантовой интерференции. В-третьих, мы должны исключить и роль рассеяния на межгранульных контактах, которое также дает отрицательное МС [7]. Наконец, влияние квантового размерного эффекта следует также исключить в силу неизбежной дисперсии гранул по размерам и достаточно большого их размера.

Туннельное МС может быть положительно, если в исходном состоянии магнитные моменты гранул, определяющих сопротивление, параллельны в плоскости пленки. Отметим, что в диэлектрической фазе доля таких гранул незначительна. При приложении поля магнитные моменты этих гранул сначала ориентируются антипараллельно в направлении поля (или, что более вероятно, магнитный момент одной из гранул ориентируется по полю, а у второй гранулы остается в плоскости пленки), а потом в поле насыщения становятся параллельными. Такой механизм нельзя полностью исключить, хотя на начальной стадии намагничивания (рис. 2) сопротивление уменьшается, что указывает на обычный механизм отрицательного МС в слабых полях, и в полевых зависимостях намагниченности, измеренных в полях до 200 Ое, каких-либо особенностей не обнаружено.

Другое возможное объяснение может заключаться в индуцированной полем магнитной блокаде. В диэлектрической фазе перенос осуществляется либо туннелированием, либо активированными прыжками по локализованным состояниям. При этом энергия активации наряду с основным кулоновским членом (кулоновская блокада) может содержать и добавочный член, связанный с  $sd$ -обменом электрона проводимости с магнитным моментом гранулы, впервые предложенный в классической работе [14] и названный магнитной блокадой. На возможность существования такого механизма положительного МС для системы суперпарамагнитных или однодоменных гранул указывалось также и в работе [15]. Оценка этого члена довольно проста. Соответствующая энергия  $E_M = kT_0$  порядка энергии подмагничивания электронов проводимости, т.е.  $T_0$  порядка 5–10 К, что совпадает с оценкой работы [15]. Такой эффект может быть существен только при низких температурах, сравнимых с  $T_0$ , и может исчезать при высоких температурах, что соответствует эксперименту. Однако полностью не исключая возможность такого механизма, следует отметить два экспериментальных факта, не соответствующих этому объяснению. Во-первых, в слабых полях МС отрицательно, а во-вторых, как показали предварительные измерения, инверсное МС практически отсутствует в продольной геометрии (магнитное поле приложено в плоскости пленки вдоль направления тока).

Третье возможное объяснение может быть связано с магнестрикцией. Примем для определенности, что проводимость носит активационный характер (для дальнейших оценок конкретный вид температурной зави-

симости  $\rho$  не имеет значения)  $\rho = A \exp(E_a/kT)$ , где энергия активации  $E_a(s)$  зависит от ширины туннельного зазора  $s$ , т.е. расстояния между гранулами. При приложении поля перпендикулярно поверхности пленки при положительной константе магнитострикции  $\lambda_s$ , что является характерным для сплавов с большим содержанием Fe, происходит удлинение гранул по полю, что сопровождается увеличением зазора между ними в поперечном направлении, т.е. в направлении тока. Тогда энергия активации увеличится, что приведет к положению МС

$$\Delta\rho/\rho \approx \Delta s/s(E_a/kT) \approx \lambda(r/s)(E_a/kT), \quad (1)$$

где  $r$  — размер гранул в направлении поля. Из этой оценки следует, что при типичных значениях параметров,  $\lambda \approx 10^{-5} - 10^{-4}$ ,  $r \approx 10$  nm,  $s \approx 1 - 10$  nm, МС достигает величины 1–10% при вполне разумных значениях отношения энергии активации к температуре  $E_a/kT \approx 10^2 - 10^3$ , если температура порядка гелиевой. Приведенная оценка носит исключительно качественный характер, а последовательная теория должна базироваться на теории трехмерной перколяции с движением электрона по оптимальным траекториям. Из этой оценки также следует, что: 1) инверсное МС должно быстро исчезать при повышении температуры; 2) оно существует только в диэлектрической фазе с большой энергией активации; 3) практически отсутствует в продольной геометрии при положительной магнитострикции; 4) мало по величине, если размеры гранулы имеют наномасштаб. Магнитострикционное изменение размеров, а следовательно, и инверсное МС, достигают максимального значения в поле насыщения намагниченности. Все эти выводы находятся в согласии с экспериментом. Более того, увеличение эффективного туннельного зазора должно проявляться и в мнимой части импеданса, которая, как емкостная и индуктивная составляющая электрической цепи, связана с геометрией зазора.

Таким образом, поперечное МС композитов  $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$  при низких температурах практически равно нулю для металлических составов за порогом перколяции, отрицательно в непосредственной окрестности порога перколяции, а в диэлектрической фазе при содержании металла меньше порога перколяции имеет место инверсное (положительное) МС. Инверсное МС достигает 7–8% в магнитных полях около 17 kOe, т.е. в магнитных полях, соответствующих насыщению. На основе анализа возможных механизмов инверсного МС высказано предположение о магнитострикционной природе обнаруженных особенностей поведения МС. Прямым подтверждением предложенного механизма могут служить детальные измерения полевой зависимости магнитострикции и продольного магнитосопротивления, что планируется осуществить в ближайшее время.

## Список литературы

- [1] А.В. Ведяев, А.Б. Грановский, О.А. Котельникова. Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах. Изд-во МГУ, М. (1992). 158 с.
- [2] D. Dieny, S. Sankar, M.R. McCattney, D.J. Smith, P. Bayle-Guillemaund, A.E. Berkowitz. *J. Magn. Magn. Mater.* **185**, 283 (1998).
- [3] C. Vouille, A. Barthelemy, F. Elokani Mpondo, A. Fert, P.A. Shroeder, S.Y. Hsu, A. Reilly. *R. Loloec. Phys. Rev. B* **60**, 6710 (1999).
- [4] А. Грановский, В. Ковалев, Ж.П. Клерк. *Вестн. МГУ. Сер. 3. Физика, астрономия* **2**, 60 (2000).
- [5] D. Bagrets, A. Bagrets, A. Vedyayev, B. Dieny. *Phys. Rev. B* **65**, 064 430 (2002).
- [6] M. Viret, Y. Samson, P. Warin, A. Marty, F. Ott, E. Sondergard, O. Klein, C. Fermon. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3962 (2000).
- [7] N. Garcia, M. Munoz, V.V. Osipov, E.V. Ponizovskaya, G.G. Qian, I.G. Saveliev, Y.-W. Zhao. *J. Magn. Magn. Mater.* **240**, 92 (2002).
- [8] M. Prudnikova, A. Granovsky, V. Prudnikov. *J. Magn. Magn. Mater.* **166**, 201 (1997).
- [9] Б.А. Аронзон, А.Е. Варфоломеев, А.А. Ликальтер, В.В. Рыльков, М.В. Седова. *ФТТ* **41**, 6, 944 (1999).
- [10] А.Е. Варфоломеев, М.В. Седова. *ФТТ* **45**, 3, 500 (2003).
- [11] Ю.Е. Калинин, А.Т. Пономаренко, А.В. Ситников, О.В. Стогней. *Физика и химия обработки материалов* **5**, 14 (2001).
- [12] N. Kobayashi, S. Onuma, T. Masumoto, H. Fujimori. *J. Appl. Phys.* **90**, 4159 (2001).
- [13] C. Wan, P. Sheng. *Phys. Rev. B* **66**, 075 309 (2002).
- [14] J.I. Gittleman, Y. Goldstein, S. Borowsky. *Phys. Rev. B* **5**, 3609 (1972).
- [15] J. Inoue, S. Maekawa. *Phys. Rev. B* **53**, 11 927 (1996).