

05,12

Туннельная проводимость и туннельное магнитосопротивление пленок Fe—SiO: корреляция магнитотранспортных и магнитных свойств

© Д.А. Балаев, А.Д. Балаев

Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, ФИЦ КНЦ СО РАН,
Красноярск, Россия

E-mail: dabalaev@iph.krasn.ru

Поступила в Редакцию 5 марта 2019 г.

В окончательной редакции 5 марта 2019 г.

Принята к публикации 5 марта 2019 г.

Приведены результаты исследования электрических свойств системы наногранулярных аморфных пленок Fe—SiO с концентрацией SiO от 0 до 92 vol.%. Для образцов с малым содержанием SiO характерен металлический режим проводимости. С увеличением содержания диэлектрика в пленках происходит концентрационный переход от металлического к туннельному режиму проводимости при концентрации диэлектрика $x \approx 0.6$. При этой же концентрации происходит переход ферромагнетик—суперпарамагнетик, исследованный ранее магнитным методом. Для составов, соответствующих диэлектрической области, температурные зависимости электросопротивления $\rho(T)$ следуют закону $\rho(T) \sim \exp(2(C/kT)^{1/2})$, что характерно для туннельного механизма проводимости. Оценка размеров металлических гранул из величин туннельно-активационной энергии C показала хорошее соответствие размерам, полученным ранее из анализа магнитных свойств. В диэлектрической области составов получен гигантский магниторезистивный эффект, достигающий 25% в низких температурах.

Ключевые слова: пленки Fe—SiO, туннельная проводимость, туннельное магнитосопротивление.

DOI: 10.21883/FTT.2019.07.47835.408

1. Введение

Интерес к магнитным, транспортным и магнито-транспортным свойствам гетерогенных систем, в которых наноразмерные металлические ферромагнитные частицы находятся в диэлектрической матрице, не ослабевает в настоящее время [1–25]. Это вызвано наличием таких эффектов в транспортных свойствах, как гигантское магнитосопротивление [2–6,8,10,12,16–19,21–25], аномальный эффект Холла [13,19,21], что, в совокупности с магнитным поведением, определяемым малым размером магнитных частиц, делает актуальным исследование магнитотранспортных свойств систем ферромагнитный металл—диэлектрик.

Отметим, что исследования магнитных и электрических свойств гранулярных кристаллических пленок 3- d металл—диэлектрик начались достаточно давно [26,27]. Повышая концентрацию диэлектрика — SiO₂ или Al₂O₃ в керметах с Ni [26] и Co [27], было обнаружено, что в этих системах происходит концентрационный переход ферромагнетик—суперпарамагнетик, а характер электрической проводимости σ при этом меняется от металлического типа до проводимости туннельного типа. К настоящему времени имеется значительное количество работ, в которых исследовались магнитные и транспортные свойства подобных двух-фазных систем в виде тонких пленок с различными ферромагнитными металлами (M) и диэлектриками (D) [1–5,9,11–13,17–28]. В диэлектрической обла-

сти концентраций x ($M_{1-x}D_x$) реализуется туннельный механизм проводимости, а наблюдающаяся температурная зависимость сопротивления $\rho(T)$ имеет характерный вид: $\ln(\rho(T)) \sim T^{-0.5}$ [1,6,12,15,17–20,22–28]. При этом системы $M_{1-x}D_x$ в области концентраций x , соответствующей туннельной проводимости, могут демонстрировать эффект гигантского магнитосопротивления [17–19,22–27,29]. Механизм такого спин-зависимого туннелирования связан тем, что при туннелировании электрона от одной гранулы в другую, сопротивление будет зависеть от направления намагниченностей μ в этих гранулах. Сопротивление туннельного контакта в случае $\mu_1 \uparrow \downarrow \mu_2$ будет больше, чем в случае $\mu_1 \uparrow \uparrow \mu_2$ [27,29].

В данной работе приводятся результаты исследований температурных зависимостей электросопротивления и магнитосопротивления $\rho(H)$ пленок Fe—SiO. Композитная система Fe—SiO занимает промежуточное положение между кристаллическими гранулярными металлами и аморфными сплавами. В ней реализуется аморфное состояние металла в грануле — кластере в диэлектрической матрице. Статья организована следующим образом. В п. 2 мы дадим краткий обзор магнитных свойств системы пленок Fe—SiO, исследованных ранее [30–32], и приведем фазовую диаграмму магнитного состояния, необходимую для интерпретации данных по электросопротивлению и магнитосопротивлению. В п. 3 будут приведены результаты исследования зависимостей $\rho(T)$ пленок Fe—SiO, и для диэлектрической области

Параметры исследованных пленок Fe–SiO (1-ая колонка — содержание SiO при напылении, x — содержание диэлектрика (SiO_y), полученное в результате коррекции составов (см. п. 2), β — показатель степени, полученный из условия $\ln(\ln \rho) \sim \beta \ln T$, $\langle d \rangle$, d_{\min} , d_{\max} — средний минимальный и максимальный размеры гранул железа, полученные из магнитных [32,40] данных, $d(4\text{ K})$, $d(78\text{ K})$, $d(300\text{ K})$ — размеры гранул, полученные по выражениям (3) и (6), см. п. 3)

vol.% SiO	x	β	$\langle d \rangle$, nm	$d_{\min} - d_{\max}$, nm	$d(4\text{ K})$, nm	$d(78\text{ K})$, nm	$d(300\text{ K})$, nm
65	0.59	—	—	—	—	—	—
69	0.615	0.4	—	—	—	—	—
72	0.645	0.42	3	1–8	4.5	1.1	0.5
75	0.675	0.52	3	1–8	5.5	1.3	0.6
77	0.69	0.54	2.8	1–8	5.5	1.3	0.6
88	0.78	0.5	1.6	0.5–5.5	5.6	1.3	0.7
92	0.83	0.5	1.3	0.5–4.5	4.6	1.1	0.5

концентрации будет проведен их анализ на основании механизма туннельной проводимости [27–29]. В п. 4 приводятся данные по магниторезистивному эффекту, который также адекватно описывается в рамках механизма туннельного магнитосопротивления. В п. 5 формулируются выводы.

2. Магнитная фазовая диаграмма пленок Fe–SiO

Система пленок Fe–SiO была получена методом вакуумного испарения, объемная концентрация SiO варьировалась в пределах от 0 до 92 vol.%. Использовались пленки с толщиной по Fe $\sim 100\text{ nm}$ на пирексовой подложке. Данные электронной микроскопии показали, что структура пленок [30,31] при содержании SiO менее 17 vol.% является микрокристаллической (с размерами кристаллитов $\sim 30\text{--}40\text{ nm}$); в области концентраций SiO $\sim 17\text{--}35\text{ vol.}\%$ представляет смесь кристаллической и аморфной фаз (с размером зерен–кластеров 25–30 nm); при больших концентрациях образцы полностью аморфны.

Измерения магнитных свойств пленок при концентрациях SiO, больших 69 vol.%, показали, что величина магнитного момента, приходящегося на атом железа, $\mu_{\text{ат}}$, начинает резко уменьшаться при содержании SiO более 70 vol.% [32] (см. также п. 3 данной работы). Это поведение логично связать с тем, что при возрастании концентрации SiO часть атомов кремния покидает нестабильное соединение SiO ($\text{SiO} \rightarrow 1/2\text{Si} + 1/2\text{SiO}_2$) [33] с образованием химической связи с железом. При этом состав гранул постепенно меняется от чистого железа до составов, близких к Fe_3Si , Fe_5Si_3 , ... и FeSi. Дополнительные измерения температурной зависимости магнитной восприимчивости показали наличие пика в окрестности $\sim 350\text{ K}$, что близко к температуре Нееля объемного соединения FeSi (450 K [34]) с учетом того, что температура магнитного упорядочения наноразмерных комплексов уменьшается [35,36]. Это косвенно подтверждает образование соединения железа и кремния на поверхности гранул в исследуемой системе. Ука-

занное обстоятельство, некритичное для интерпретации магнитных свойств [30–32], требует коррекции концентрации диэлектрика при интерпретации электрических свойств, т. к. соединения типа Fe_3Si , FeSi остаются металлами [34,37,38], а реальная концентрация диэлектрика (в данном случае — SiO_y , $1 \leq y \leq 2$) уменьшается. Коррекция составов пленок проводилась из предположения, что каждый атом Si, химически связываясь с атомом Fe, „зануляет“ его магнитный момент [34,39], а в роли диэлектрика выступает SiO_y . Далее в работе под концентрацией диэлектрика x подразумевается объемное содержание SiO_y (от 0 до 0.83). В таблице приведены данные по содержанию SiO, использованные при приготовлении пленок — первый столбец и реальное содержание диэлектрика (второй столбец).

На рис. 1 приведена магнитная фазовая диаграмма концентрация диэлектрика x — температура исследованной системы пленок. Пунктирная линия на рис. 1 показывает линию раздела ферромагнетик–парамагнетик (FM–P). Фактически, это температура Кюри Θ гранул, которая уменьшается с увеличением SiO при аморфизации железа¹. Эта линия раздела в области концентраций до $x = 0.59$ была определена двумя методами: спин-волнового резонанса (из значений констант спин-волновой жесткости D) [30] и вибрационного магнетометра (из сравнения температурных зависимостей намагниченности насыщения с законом Блоха) [31].

Для пленок с большими значениями x данные фазовой диаграммы (рис. 1), были получены из описания экспериментальных кривых намагничивания $M(H)$ [32,40]. Описание основывалось на результатах моделирования зависимостей $M(H)$ в диапазоне 4.2–300 K функцией Ланжевена, описывающей суперпарамагнитное (SP) поведение магнитного момента частицы μ , с учетом распределения частиц по размерам. Кроме того, учитывалось поведение $\mu(T)$ (в виде функции Бриллюэна), которое позволяло определять температуру Кюри Θ пленки и границу SP–P. Межчастичные взаимодействия учитывались введением эффективного поля $H_{\text{эф}} = H + \gamma M$,

¹ Скорее всего, стабилизирующим фактором аморфного состояния гранул в пленках является кремний.

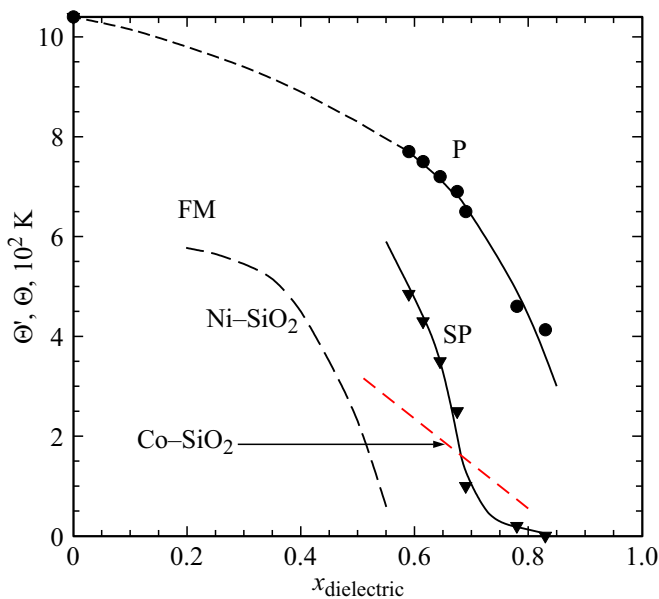


Рис. 1. Фазовая диаграмма системы пленок Fe–SiO₂: x — концентрация диэлектрика SiO₂, Θ — температура Кюри гранул железа, Θ' — температура межгранульного упорядочения. Показаны области с ферромагнитным (FM), суперпарамагнитным (SP) и парамагнитными (P) состояниями. Штриховые линии — границы раздела FM–SP для Ni–SiO₂ [26], Co–SiO₂ [27] систем.

где константа взаимодействия γ пропорциональна температуре межгранульного упорядочения Θ' . Описанный анализ позволяет выделить на магнитной фазовой диаграмме область SP состояния пленок, см. рис. 1. Также на этом рисунке для сравнения приведены линии раздела FM–SP для систем Ni–SiO₂ [26], Co–SiO₂ [27].

Отметим, что величины средних размеров гранул железа $\langle d \rangle$ в SP области концентраций x составляют единицы нанометров. В таблице указаны минимальный d_{\min} и максимальный d_{\max} размеры частиц из распределения по размерам (по условию $\int_{d_{\min}}^{d_{\max}} f(d) \partial(d) \approx 0.95$), а также

средний $\langle d \rangle$ размер частиц железа, полученные из результатов обработки зависимостей $M(H)$ [32]. Магнитно не активная поверхность (соединение Fe–Si толщиной 1–2 атомных слоя) частиц, не входит в размеры d_{\min} , d_{\max} , $\langle d \rangle$ [40].

3. Температурные зависимости электросопротивления пленок Fe–SiO

Измерения транспортных и магнитотранспортных свойств выполнялись на специальной вставке автоматизированного вибрационного магнетометра [41] стандартным четырехзондовым методом. Контакты наносились индий-галлий-ртутной амальгамой. Для составов с металлическим типом проводимости использовался

режим постоянного тока, для составов с туннельным типом проводимости режим постоянного напряжения. При использованных значениях тока и напряжения (до ~ 500 V для диэлектрической области составов) выполнялся закон Ома. Расстояние между потенциальными контактами составляло ~ 1 см. Внешнее поле прикладывалось параллельно направлению тока в плоскости пленок.

На рис. 2 приведены концентрационные зависимости $\rho(x)$ при $T = 300$ K, $T = 78$ K и $T = 4.2$ K. Из рис. 2 видно, что область составов пленок можно разбить на три участка: $0 < x < 0.45$ и $0.6 \leq x \leq 0.83$ с металлическим и диэлектрическим режимами проводимости, соответственно, и $0.45 \leq x \leq 0.6$ — переходный режим.

Рассмотрим сначала металлический режим проводимости. Величина $\rho(x=0)$ составляет $\approx 5\rho$ массивного железа. С увеличением содержания диэлектрика, удельное сопротивление возрастает, характер кривых $\rho(T)$ меняется и, начиная с $x \geq 0.35$, поведение зависимостей $\rho(T)$ характерно для неметаллической проводимости. Температурный коэффициент сопротивления $\alpha = (1/\rho)\partial\rho/\partial T$ с увеличением x постепенно уменьшается и меняет знак. Для $x = 0.3$ в области $100 \leq T \leq 300$ K значение α составляет всего $\approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ и, в принципе, можно подобрать состав с еще меньшим α . Отметим также, что для образцов в промежутке $0.1 \leq x \leq 0.2$ в окрестности $T \sim 30$ K наблюдаются минимумы сопротивления, характерные для неравновесных сплавов. С увеличением x значение температуры минимума возрастает.

Обычно зависимости $\rho(T)$ металлических сплавов выражаются феноменологическим уравнением:

$$\rho(T) = \rho_0 - a \lg T + bT^2 + cT.$$

Построение графиков $\rho(T)$ по этому выражению для концентраций $0.1 \leq x \leq 0.2$ из экспериментальных ре-

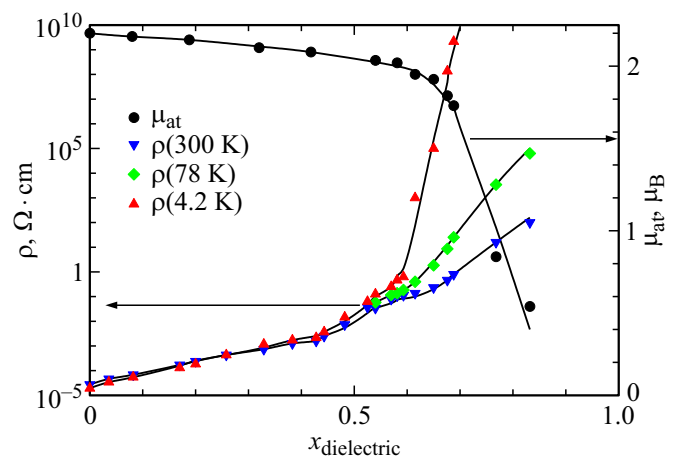


Рис. 2. Концентрационная зависимость удельного электросопротивления $\rho(x)$ при указанных температурах (ρ — левая шкала) и магнитного момента, приходящегося на атом железа (μ_{at} , правая шкала) от содержания диэлектрика x .

зультатов выявило наличие всех четырех членов. Слагаемое, пропорциональное $-\lg T$ вносит вклад в области ниже температуры минимума $\rho(T)$, в области температур до ≈ 100 К преобладает квадратичный член (T^2), далее, до комнатной температуры зависимость $\rho(T)$ пропорциональна T . Логарифмический член, видимо, связан с s - d рассеянием Кондо. Квадратичный член обусловлен рассеянием s -электронов на локализованных d -электронах, либо с флуктуацией спиновой плотности. Линейный член обусловлен электрон-фононным взаимодействием.

Дальнейшее повышение содержания диэлектрика (рис. 2) вызывает рост сопротивления пленок и при концентрации $x \approx 0.6$ удельное сопротивление возрастает очень резко, что особенно проявляется при $T = 4.2$ К. Это обусловлено развалом бесконечного металлического кластера на изолированные частицы. Переходный режим меняется на диэлектрический. Гранулы, состоящие из Fe, либо из Fe_3Si отделяются друг от друга диэлектрической прослойкой из SiO_y ($1 \leq y \leq 2$). Величина магнитного момента μ_{at} , также приведенная на рис. 2, при этом же значении $x \approx 0.6$ начинает резко падать. Это падение обусловлено (см. п. 2) образованием антиферромагнитного соединения FeSi на поверхности гранул. Бесконечный ферромагнитный кластер распадается на ферромагнитные гранулы. Корреляция электрических и магнитных свойств очевидна из данных рис. 2.

В диэлектрической области составов $x = 0.6-0.83$ (и, соответственно, в SP области) при понижении температуры зависимости $\rho(T)$ возрастают (при понижении температуры) очень резко. Из условия $\ln(\ln \rho) \sim \beta \ln T$ были определены экспериментальные значения β (показатель степени в выражении $\rho(T) \sim \rho_0 \exp(T^{-\beta})$). Значения β оказались близкими к величине 0.5, см. таблицу. Как упоминалось во Введении, температурная зависимость сопротивления $\rho(T) \sim \exp(T^{-0.5})$ наблюдалась достаточно часто для гранулярных систем [1,6,12,15,17–20,22–28]. Не останавливаясь на достоинствах и недостатках различных моделей [26–29,19–21,42], ведущих к зависимости $\ln(\rho(T)) \sim T^{-0.5}$, интерпретируем эксперимент по модели, предложенной в работах [27–29].

В диэлектрическом режиме металлические гранулы размера d разделены прослойками s . Проводимость обусловлена перезарядкой соседних гранул; электроны туннелируют через межгранульные промежутки s благодаря термоактивационным процессам. В режиме слабого электрического поля ($e\Delta V \ll kT^2$, где ΔV — разность потенциалов между соседними гранулами, k — константа Больцмана, e — заряд электрона) проводимость σ определяется бальцмановским выражением, в котором в показателе экспоненты, помимо вероятности туннелирования $2\kappa s$ (κ — величина, обратная электронной длине волны, характеризующая длину спада волновой функции

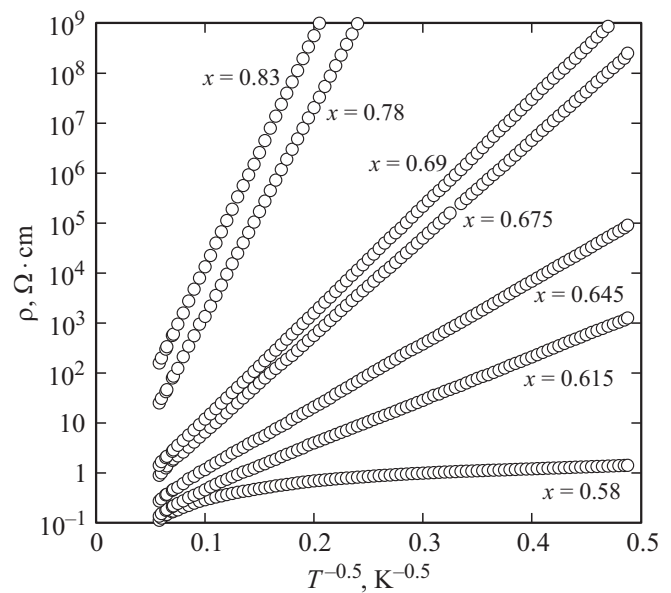


Рис. 3. Зависимости удельного сопротивления ρ от $T^{-0.5}$ для образцов с различной объемной концентрацией диэлектрика x .

электрона в диэлектрике [27–29,19]), есть слагаемое, связанное с зарядовой энергией E_C ($E_C \sim e^2/d$)

$$\sigma \sim \exp(-E_C/2kT - 2\kappa s). \quad (1)$$

При достаточно сильном упрощении $s/d = \text{const}$ для конкретной пленки проводимость, как функция (s/d) при каждой температуре, имеет максимум, и, соответственно, при каждой температуре имеются наиболее вероятные межгранульные промежутки s_m , через которые происходит туннелирование. В результате, температурная зависимость $\rho(T)$ имеет следующий вид [27–29]:

$$\rho(T) = \rho_0 \exp[2(C/kT)^{0.5}]. \quad (2)$$

В этом выражении туннельно-активационная энергия C может быть выражена через вероятные межгранульные промежутки $s_m(T)$

$$s_m = (C/kT)^{0.5}/2\kappa. \quad (3)$$

На рис. 3 приведены зависимости ρ (логарифмическая шкала) от $T^{-0.5}$ для исследованных пленок. Видно, что для образцов с $x = 0.615-0.83$ экспериментальные точки достаточно хорошо ложатся на прямые, согласно выражению (2), и такая зависимость выполняется в широкой области температур $4.2 \leq T \leq 300$ К. При уменьшении содержания диэлектрика ($x \leq 0.58$) наблюдается отклонение от прямых, см. рис. 3, особенно в высоких температурах.

По углу наклона прямых (рис. 3) определены величины туннельно-активационной энергии C (выражение (2)), показанные на рис. 4 как функция концентрации диэлектрика x . Для такой концентрационной зависи-

² По нашим оценкам, полученным из размеров гранул, условие $e\Delta V \ll kT$ выполнялось для условий эксперимента.

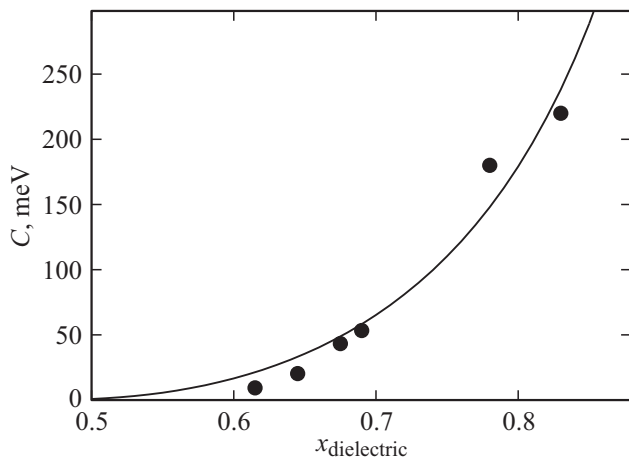


Рис. 4. Концентрационная зависимость туннельно-активационной энергии C от содержания диэлектрика x . Точки — экспериментальные данные, сплошная кривая — подгонка по выражению (4) при $\eta = 1.1$ eV.

мости было получено следующее выражение [27–29]:

$$C(x) = \eta \frac{\left[\left(\frac{\pi}{6(1-x)} \right) \right]^2}{\left(\frac{\pi}{6(1-x)} \right)^{1/3} - \frac{1}{2}}. \quad (4)$$

Выражение (4) справедливо при значениях x , не слишком близких к единице, а параметр η , применительно к экспериментальным данным системы металл–диэлектрик, можно считать подгоночным, хотя η имеет смысл высоты туннельного барьера, через который туннелируют электроны. Данные рис. 4 неплохо описываются выражением (4) при $\eta = 1.1$ eV — сплошная кривая на рис. 4.

Параметр η связан с характеристиками диэлектрических прослоек следующим соотношением:

$$\eta = 2\kappa e^2 / 4\epsilon_0 \epsilon, \quad (5)$$

где ϵ_0 — электрическая постоянная, ϵ — диэлектрическая проницаемость. Величина κ имеет порядок 10^{10} m ($1/\kappa \sim 0.1$ nm) [27–29,19]. Выражение (5) соответствует величине $\eta = 1.1$ eV, если принять, что $\epsilon \approx 15$. Это существенно больше, чем для объемного SiO_2 ($\epsilon \approx 4$). Для исследованных пленок диэлектрические промежутки сформированы аморфной фазой оксида кремния SiO_y ($1 \leq y \leq 2$), см. п. 2, и, скорее всего, есть неоднородность по y в пространстве между металлическими гранулами. Известно, что диэлектрическая проницаемость SiO_y для промежуточных значений y возрастает, по сравнению с SiO_2 [43–45] в разы, что вполне согласуется с результатами анализа экспериментальной зависимости $C(x)$ по выражениям (4), (5). Кроме того, высота туннельного барьера U оксида кремния SiO_y также существенно зависит от y : если для SiO_2 $U \approx 9$ eV, то для SiO $U \sim 1$ eV [46,47]. Высота туннельного барьера

определяет длину спада волновой функции электрона в диэлектрике κ^{-1} по выражению $\kappa^{-1} = (2m_e U / \hbar^2)^{-1/2}$ (m_e — эффективная масса электрона, \hbar — постоянная Планка). Значения η и U , фактически, имеют один и тот же смысл: $\eta \approx U$. При $U \approx 1.1$ eV значение κ^{-1} составляет ≈ 0.17 nm, в согласии с работами [27–29,19]. Следовательно, полученное значение $U \approx 1.1$ eV вполне согласуется с тем, что прослойки между металлическими гранулами сформированы диэлектриком SiO_y . Таким образом, полученная концентрационная зависимость $C(x)$ вполне укладывается в рамки использованных модельных представлений [27–29].

Прямое определение промежутков s и размеров гранул d из сравнения экспериментальных значений туннельно-активационной энергии C провести невозможно, поскольку s и d входят в них в виде отношения. Согласно выражению (3), преобладающий вклад в электропроводность дают различные диэлектрические промежутки при различных температурах. При высоких температурах туннелирование между малыми гранулами (большие значения зарядовой энергии E_C) обусловлено малыми промежутками s . При низких температурах туннелирование предпочтительнее между большими гранулами (малые величины зарядовой энергии E_C и, соответственно, большие промежутки s). Следует отметить, что такая модель сильно упрощена, она не учитывает туннелирование между гранулами различных размеров. Однако, поскольку температурный интервал измерений велик, то по выражению (3) из экспериментальных значений C можно оценить значения промежутков s_m , ответственных за перенос заряда при высоких и низких температурах. Далее, из условия определения объемной концентрации металла x для простой кубической решетки

$$s/d = \left(\frac{\pi}{6(1-x)} \right)^{1/3} - 1 \quad (6)$$

можно пересчитать значения d , которые будут соответственно максимальными и минимальными в пленке. В таблице приведены значения d , полученные для температур 4, 78 и 300 K. В расчетах бралось полученное выше значение κ^{-1} , равное 0.17 nm. Из сравнения приведенных в таблице минимальных d_{\min} и максимальных d_{\max} размеров частиц железа, полученных из результатов обработки кривых намагничивания [32], а также размеров d , полученных из анализа транспортных свойств, видна хорошая корреляция. Значения $d(300$ K) и $d(4$ K) попадают на „хвосты“ функций распределения размеров, определенных магнитным методом, тем самым подтверждая значения среднего размера $\langle d \rangle$.

4. Туннельное магнитосопротивление

Образцы в диэлектрической области концентраций демонстрировали отрицательное магнитосопротивление. Приведем в качестве примера данные для пленки с

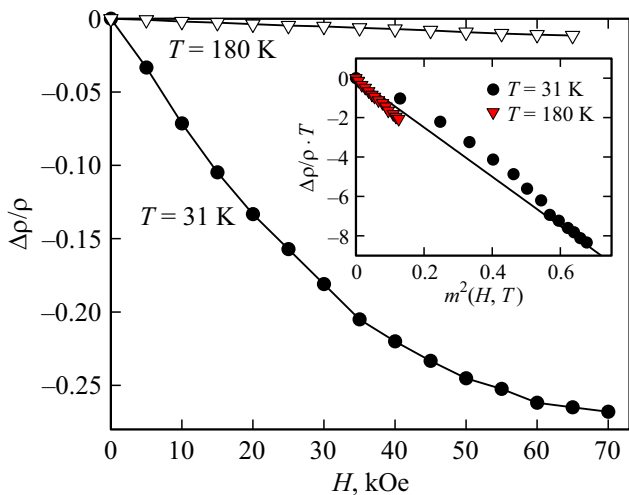


Рис. 5. Магнитосопротивление $\Delta\rho(H)/\rho_0$ образца с содержанием диэлектрика $x = 0.83$ при указанных температурах. На вставке: данные в координатах $\Delta\rho/\rho_0 \cdot T$, $m^2(H, T)$, линия построена по выражению (8), при $JP = 4 \text{ meV}$.

$x = 0.78$, для которой наблюдалось значительное магнитосопротивление $\Delta\rho/\rho_0 = [\rho(T) - \rho(H = 0)]/\rho(H = 0)$. Согласно фазовой диаграмме (рис. 2), для этого образца есть широкий температурный интервал SP области. На рис. 5. представлены зависимости $\Delta\rho(H)/\rho_0$ для этой пленки при двух температурах — 31 К и 180 К. Видно, что отрицательный магниторезистивный эффект $\Delta\rho/\rho_0$ при температуре 31 К достигает 25% в поле $H = 70 \text{ kOe}$.

Поскольку в п. 3 показано, что в области концентраций $x > 0.615$ имеет место туннельный механизм проводимости, интерпретируем результаты в рамках механизма туннельного магнитосопротивления [27, 29]. Туннелируют, в основном, свободные электроны (s — электроны). При акте туннелирования в грануле — доноре 1 разрывается, а в грануле — акцепторе 2 появляется обменная J_{sd} связь, то есть, возникает энергия, E_m туннелирующего электрона в грануле 2 и грануле 1 при сохранении спина в процессе туннелирования. Величина и знак E_m зависят от взаимной ориентации магнитных моментов μ соседних гранул и поляризации P (поляризации s -электронов d -электронами). $E_m \geq 0$ когда μ_1 и μ_2 антипараллельны и $E_m < 0$, когда μ_1 и μ_2 параллельны. Учет дополнительного слагаемого, связанного с E_m , в показателе экспоненты выражения (1) и разложение правой части (1) в линейном приближении по членам E_m (при $E_m/kT \leq 1$) приводит к формуле [27,29], описывающей туннельное магнитосопротивление:

$$\begin{aligned} [\rho(H) - \rho(H = 0)]/\rho(x = 0) &= \Delta\rho/\rho_0 \\ &= -(JP/4kT)[m^2(H, T) - m^2(h = 0, T)], \end{aligned} \quad (7)$$

где $m(H, T)^2 = (\mu_1 \cdot \mu_2)/\mu^2$ — квадрат относительной намагниченности.

Согласно выражению (7) магнитосопротивление будет максимальным при температуре перехода

FM–SP [27,29]. Температуры, при которых был измерен магниторезистивный эффект, рис. 5, соответствуют SP фазе, а температура 31 К находится вблизи линии раздела FM–SP (см. рис. 1). Видимо, этот факт и объясняет гигантский магниторезистивный эффект при 31 К.

В SP состоянии $m^2(0, T) \equiv 0$, и выражение (7) переписывается в виде

$$\Delta\rho/\rho_0 = -\rho_0 = -(JP/4kT)m^2(H, T). \quad (8)$$

Следовательно, относительный магниторезистивный эффект должен описываться квадратом относительной намагниченности с коэффициентом $JP/4kT$. На вставке рис. 5 магнитосопротивление представлено в координатах $\Delta\rho/\rho_0 \cdot T$, $m^2(H, T)$; данные по намагниченности взяты из предыдущих работ [32,40]. Видно, что экспериментальные данные для температуры $T = 180 \text{ K}$ хорошо описываются линейной зависимостью, в согласии с (8), в то время как для температуры 31 К согласие заметно хуже. Такое отклонение от предсказываемой квадратичной зависимости наблюдалось ранее на различных системах [8,21,17,18,24,25], и в основном, это связывалось с влиянием распределения металлических ферромагнитных гранул и, соответственно, диэлектрических промежутков по размерам. Действительно, при вычислении проводимости и магнитосопротивления учитывается туннелирование между наиболее вероятными межгранульными промежутками s_m (определяемыми по выражению (3)), через которые происходит туннелирование. Согласно условию $s/d = \text{const}$, см. п. 3, необходимо учитывать вклад в намагниченность от гранул, чьи размеры соответствуют условию $s/d = \text{const}$, в то время как намагниченность — интегральная характеристика от гранул всех размеров. Мы провели оценку величины $J \cdot P$, из данных рис. 5 (вставка рис. 5) из среднего наклона прямых, проведенных методом наименьших квадратов по экспериментальным точкам $\Delta\rho/\rho_0$ в двух температурах. Величина $J \cdot P$, согласно выражению (8), составила $4 \text{ meV} (\pm 20\%)$. Известно, что значение спиновой поляризации P для s -электронов в железе достигает 0.44 [48,24], из чего получаем $J \approx 9 \text{ meV} (\pm 20\%)$.

Ранее из магнитных измерений для пленки крайнего ферромагнитного состава $x = 0.615$, для которой еще выполняется закон Блоха, из константы Блоха, была определена константа спин-волновой жесткости D ($100 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$) [30]. Оценка J по выражению $D = 2JS^2a^2$ (a — постоянная решетки $\leq 3 \text{\AA}$, $S = 1$) дает величину $J \approx 6 \text{ meV}$. Получено достаточно разумное согласие в величинах обмена, определенного разными методами. Однако следует заметить, что из закона Блоха экспериментально определяется эффективный обмен, а из магниторезистивного эффекта только J_{sd} . Кроме того, сравнение проведено, хотя и близких, но различных по составу образцов. Оценка J по общеизвестному выражению теории среднего поля $J = 3kT_C/2ZS(S + 1)$ (Z — число ближайших соседей) для исследованной

пленки $x = 0.78$ при $T_C = 452$ К (см. рис. 1), $S = 1$, $Z = 6$ дает $J = 4.9$ meV.

5. Заключение

Исследование транспортных свойств системы аморфных нанокластерных пленок Fe–SiO и анализ полученных результатов в совокупности с данными магнитных измерений, проведенные в данной работе, позволили сделать следующие выводы. В роли диэлектрической матрицы в данных пленках выступает аморфная фаза оксида кремния SiO_y ($1 \leq y \leq 2$), формирующаяся из-за частичного образования соединений Fe–Si на поверхности гранул железа. Наблюдается концентрационный переход от металлического типа проводимости к туннельной проводимости при содержании диэлектрика $x \approx 0.6$. Это вызвано развалом „бесконечного“ металлического кластера на отдельные наноразмерные частицы. При этой же концентрации диэлектрика на фазовой диаграмме концентрация — температура появляется область, соответствующая суперпарамагнитному состоянию магнитных моментов гранул железа. В диэлектрической области составов температурная зависимость электросопротивления описывается выражением $\rho(T) = \rho_0 \exp[2(C/kT)^{0.5}]$, характерном для туннельного механизма проводимости. Анализ концентрационной зависимости туннельной активационной энергии C в рамках используемой модели [27–29] показал разумное согласие с характерными параметрами диэлектрика SiO_y и размерами металлических гранул, определенных ранее из магнитных измерений. Для пленки с содержанием диэлектрика $x \approx 0.78$) наблюдается гигантский, для металлокерметов, магниторезистивный эффект $\Delta\rho/\rho_0 \approx 25\%$ в поле $H = 70$ kOe при температуре $T = 31$ К, близкой к температуре перехода ферромагнетик–суперпарамагнетик. Вид зависимостей $\Delta\rho(H)/\rho_0$ удовлетворительно описывается в рамках механизма туннельного магнитосопротивления, в котором величина $\Delta\rho/\rho_0$ пропорциональна квадрату намагниченности. Таким образом, исследование серии пленок Fe–SiO показало корреляцию их транспортных, магнитотранспортных и магнитных свойств.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] О.В. Геращенко, В.А. Уклеев, Е.А. Дядькина, А.В. Ситников, Ю.Е. Калинин. ФТТ **59**, 157 (2017).
- [2] Н.В. Волков. УФН **182**, 3, 263 (2012).
- [3] A.S. Tarasov, M.V. Rautskii, A.V. Lukyanenko, M.N. Volochaev, E.V. Eremin, V.V. Korobtsov, V.V. Balashev, V.A. Vikulov, L.A. Solovyov, N.V. Volkov. J. Alloys Comp. **688**, 1095 (2016).
- [4] I. Edelman, M. Esters, D.C. Johnson, G. Yurkin, A. Tarasov, M. Rautsky, M. Volochaev, S. Lyashchenko, R. Ivantsov, D. Petrov, L.A. Solovyov. J. Magn. Magn. Mater. **443**, 107 (2017).
- [5] А.Б. Грановский, М. Ильин, А. Жуков, В. Жукова, Х. Гонзалес. ФТТ **53**, 299 (2011).
- [6] O. Kaman, Z. Jirák, J. Hejtmánek, A. Ndayishimiye, M. Prakasham, G. Goglio. J. Magn. Magn. Mater., **479**, 135 (2019). doi: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2019.01.114J>.
- [7] В.В. Рыльков, С.Н. Николаев, В.А. Демин, А.В. Емельянов, А.В. Ситников, К.Э. Никируй, В.А. Леванов, М.Ю. Пресняков, А.Н. Талденков, А.Л. Васильев, К.Ю. Черноглазов, А.С. Веденесев, Ю.Е. Калинин, А.Б. Грановский, В.В. Тугушев, А.С. Бугаев. ЖЭТФ **153**, 3, 424 (2018).
- [8] K.A. Shaykhtudinov, D.A. Balaev, S.V. Semenov, S.I. Popkov, A.A. Dubrovskiy, N.V. Sapronova, N.V. Volkov. J. Phys. D **44**, 255001 (2011).
- [9] А.Б. Грановский, Ю.Е. Калинин, М.А. Каширин, Д.В. Колмаков, В.В. Рыльков, А.В. Ситников, С.А. Вызулин, Е.А. Ганьшина, А.Н. Талденков. ЖЭТФ **152**, 2, 363 (2017).
- [10] K.A. Шайхутдинов, Д.А. Балаев, С.И. Попков, С.В. Семенов, Н.В. Сапронова, Н.В. Волков. ФТТ **53**, 2332 (2011).
- [11] S.V. Komogortsev, E.A. Denisova, R.S. Iskhakov, A.D. Balaev, L.A. Chekanova, Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov. J. Appl. Phys. **113**, 17C105 (2013).
- [12] Л.В. Луцев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, О.В. Стогней. ФТТ **44**, 180234 (2002).
- [13] 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 ЖЭТФ **70**, 2, 87 (1999).
- [14] K.A. Шайхутдинов, С.В. Семенов, Д.А. Балаев, М.И. Петров, Н.В. Волков. ФТТ **51**, 734 (2009).
- [15] В.В. Рыльков, Б.А. Аронзон, А.Б. Давыдов, Д.Ю. Ковалев, Е.З. Мейлихов. ЖЭТФ **121**, 4, 908 (2002).
- [16] K.A. Shaykhtudinov, S.I. Popkov, S.V. Semenov, D.A. Balaev, A.A. Dubrovskiy, K.A. Sablina, N.V. Sapronova, N.V. Volkov. J. Appl. Phys. **109**, 053711 (2011).
- [17] D. Tripathy, A.O. Adeyeye, S. Shannigrahi. Phys. Rev. B **76**, 174429 (2007).
- [18] B.J. Hattink, M.G. del Muro, Z. Konstantinović, X. Batlle, A. Labarta, M. Varela. Phys. Rev. B **73**, 045418 (2006).
- [19] Б.А. Аронзон, А.Е. Варфоломеев, Д.Ю. Ковалев, А.А. Ликальтер, В.В. Рыльков, М.А. Седова. ФТТ **41**, 944 (1999).
- [20] Е.З. Мейлихов. ЖЭТФ **115**, 4, 1484 (1999).
- [21] Е.З. Мейлихов. Письма ЖЭТФ **69**, 8, 579 (1999).
- [22] Е.З. Мейлихов, Б. Раке, Х. Ракото. ЖЭТФ **119**, 5, 937 (2001).
- [23] S. Sankar, A.E. Berkowitz, D.J. Smith. Phys. Rev. B **62**, 14273 (2000).
- [24] T. Zhu, Y.J. Wang. Phys. Rev. B **60**, 11918 (1999).
- [25] S. Honda, T. Okada, M. Nawate, M. Tokumoto. Phys. Rev. B **56**, 14566 (1997).
- [26] J.I. Gitelman, Y. Goldstein, S. Bozovski. Phys. Rev. B **5**, 3609 (1972).
- [27] S. Barzilai, Y. Goldstein, J. Balberg, I.S. Helman. Phys. Rev. B **23**, 1809 (1981).
- [28] B. Abeles, P. Sheng, M.D. Coutts, Y. Arie. Adv. Phys. **24**, 407 (1975).
- [29] J.S. Helman, B. Abeles. Phys. Rev. Lett. **37**, 1429 (1976).
- [30] В.Р. Хрусталева, А.Д. Балаев, В.Г. Поздныakov. Thin Solid Films **130**, 195 (1985).

- [31] Б.П. Хрусталеv, А.Д. Балаев, В.Г. Поздняков, Л.И. Вершинина. ФТТ **27**, 11, 3222, (1985).
- [32] Б.П. Хрусталеv, А.Д. Балаев, В.М. Соснин. ФТТ **37**, 6, 1676 (1995).
- [33] G.K. Celler, L.E. Trimble. Appl. Phys. Lett. **53**, 25, 2492 (1988).
- [34] Д. Гуденаф. Магнетизм и химическая связь. Металлургия, М. (1968). 325 с.
- [35] S. Thota, J.H. Shim, M.S. Seehra. J. Appl. Phys. **114**, 214307 (2013).
- [36] Ю.А. Кумзеров, Н.Ф. Картенко, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, А.А. Сысоева, Н. Misiorek, A. Jezowski. ФТТ **54**, 5, 1000 (2012).
- [37] A.S. Tarasov, A.V. Lukyanenko, I.A. Tarasov, I.A. Bondarev, T.E. Smolyarova, N.N. Kosyrev, V.A. Komarov, I.A. Yakovlev, M.N. Volochaev, L.A. Solovyov, A.A. Shemukhin, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov, G.S. Patrin, N.V. Volkov. Thin Solid Films **642**, 20 (2017).
- [38] A.S. Tarasov, A.V. Lukyanenko, M.V. Rautskii, I.A. Bondarev, D.A. Smolyakov, I.A. Tarasov, I.A. Yakovlev, S.N. Varnakov, S.G. Ovchinnikov, F.A. Baron, N.V. Volkov. Semicond. Sci. Technol., **34**, 035024 (2019).
doi: <https://doi.org/10.1088/1361-6641/ab0327>
- [39] Y. Shimada, H. Kojima. J. Appl. Phys., **47**, 4156 (1976).
- [40] В.Р. Хрусталеv, А.Д. Балаев, В.М. Соснин. Solid State Commun. **95**, 5, 271 (1995).
- [41] А.Д. Балаев, Ю.В. Бояршинов, М.М. Карпенко, Б.П. Хрусталеv. ПТЭ **3**, 167, (1985).
- [42] A.L. Efros, B.I. Shklovskii. J. Phys. C **8**, L49 (1975).
- [43] D. Gitlin, J. Karp, B. Mozhes. J. Phys. D **40**, 2143 (2007).
- [44] F. Giustino, A. Pasquarello. Microelectron. Eng. **80**, 420 (2005).
- [45] N. Tomozeiu. Thin Solid Films **516**, 8199 (2008).
- [46] A. Krywko-Cendrowska, M. Strawski, M. Szklarczyk. Electrochim. Acta **108**, 112 (2013).
- [47] N. Tomozeiu. Silicon Oxide (SiO_x, 0 < x < 2): a Challenging Material for Optoelectronics, in Optoelectronics — Materials and Techniques / Ed. P. Predeep.(2011).
- [48] P.M. Tedrov, R. Meservey. Phys. Rev. B **7**, 1, 318 (1973).

Редактор К.В. Емцев