

УДК 546.76;537.633.9;537.311.31

ЭФФЕКТЫ ПЕРКОЛЯЦИИ В ПРОВОДИМОСТИ И МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИИ ПРЕССОВАННОГО ПОРОШКА ДИОКСИДА ХРОМА

© 2010 г. Б. И. Белевцев¹, Н. В. Далакова¹, М. Г. Осмоловский², Е. Ю. Беляев¹,
А. А. Селютин², Ю. А. Колесниченко¹

E-mail: belevtsev@ilt.kharkov.ua

В интервале температур 5–430 К и магнитных полей до 1.6 Тл исследованы резистивные и магнито-резистивные свойства субмикронного (120 нм) прессованного порошка CrO_2 с температурой Кюри около 385 К. Образец проявил немагнитический температурный ход сопротивления и большое отрицательное магнитосопротивление (МС) (20%) в низкотемпературной области. Величина МС быстро уменьшается с повышением температуры и для $T > 200$ К составляет менее 0.3%. Показано, что такое поведение МС характерно для систем магнитных гранул со спин-зависимым межгранульным туннелированием. Некоторые особенности поведения МС в низкотемпературной области (ниже 40 К) могут быть связаны с перколяционным характером туннельной проводимости такой гранулированной системы при условии наличия ограниченного числа доминирующих проводящих токовых путей.

Диоксид хрома (CrO_2) – ферромагнетик с температурой Кюри $T_c \approx 390$ К. Как мелкозернистая среда в течение длительного времени он использовался для магнитной записи. Это вещество является половинным металлом [1–3]. В половинных металлах зона проводимости на уровне Ферми имеет носители только одной спиновой поляризации. При низких температурах величина поляризации может приближаться к 100%. Вещество перспективно для использования в спинтронике и в нанотехнологиях. Собственное магнитосопротивление (МС) кристалла CrO_2 составляет около 1%/Тл при комнатной температуре [3]. Для прессованного порошка CrO_2 с достаточно слабыми связями между ферромагнитными (ФМ) гранулами МС может достигать 30% при достаточно низких температурах [1, 4]. МС такого гранулированного материала является несобственным и определяется технологией его приготовления. Диэлектрические прослойки препятствуют прямому ФМ-обмену между соседними гранулами, допуская, однако, туннелирование электронов. Туннелирование зависит от относительной ориентации вектора намагниченности в соседних гранулах [3] и очень чувствительно к приложенному магнитному полю. Вероятность туннелирования максимальна, когда моменты в смежных гранулах ориентированы параллельно [3]. МС, обусловленное спин-зависимым туннелированием носителей, называют туннельным МС (ТМС).

Ранее изучение МС спрессованных порошков CrO_2 проводили в основном на коммерческих порошках, используемых для магнитной записи [1, 2, 4]. Эти порошки состояли из игловидных частиц, покрытых тонким поверхностным слоем антиферромагнитного Cr_2O_3 , обеспечивающего туннельный контакт между отдельными частицами. Интересно изучить поведение МС порошков CrO_2 , приготовленных альтернативным методом и покрытых изолирующими прослойками иного типа. В данном исследовании порошок CrO_2 приготовлен методом гидротермального синтеза, а частицы CrO_2 стабилизировали путем нанесения тонкого слоя $\beta\text{-CrOON}$. Образцы состояли из округленных частиц CrO_2 , что обеспечивало меньшую анизотропию формы и меньшую пористость образца. Технология приготовления и свойства такого порошка CrO_2 изложены в [5]. В настоящей работе представлены результаты измерения его резистивных и магниторезистивных свойств.

Температурная и магнитополевые (в полях до 1.6 Тл) зависимости сопротивления регистрировали в режиме выполнения закона Ома. Сопротивление имело резко выраженное немагнитическое поведение ($dR/dT < 0$) и изменялось почти на два порядка в интервале температур 5–430 К (рис. 1). Зависимость $R(T)$ близка к экспоненциальной только при низкой температуре ($T < 20$ К). Магнитосопротивление $[R(H) - R(0)]/R(0)$ в полях, перпендикулярных направлению тока, составило –20% при $T = 5$ К для $H = 1.2$ Тл (см. вставку на рис. 1). Температурная зависимость

¹ Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины, Харьков.

² Санкт-Петербургский государственный университет.

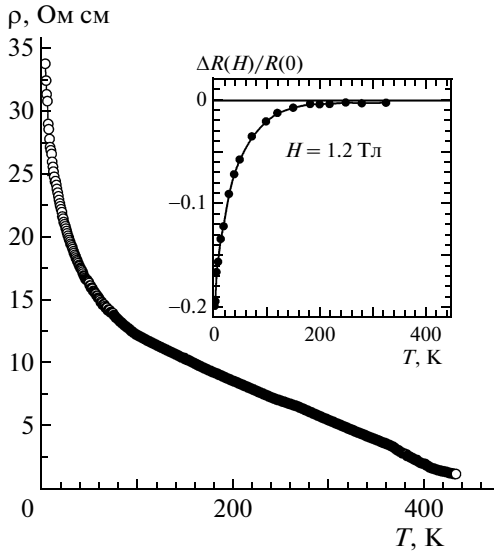


Рис. 1. Температурная зависимость удельного сопротивления в интервале температур 5 – 430 К. На вставке показана температурная зависимость МС в поле 1.2 Тл.

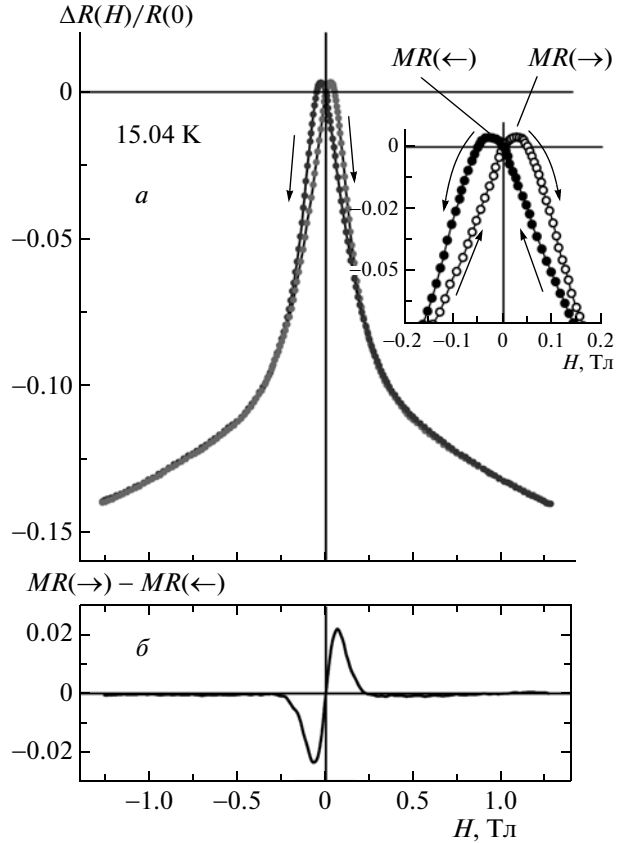


Рис. 3. *a* – кривые МС при $T = 15.04$ К; вставка показывает поведение МС в области малых полей; *б* – зависимость от магнитного поля разности между кривыми $MR(\rightarrow)$ и $MR(\leftarrow)$ для противоположных направлений разворачивания поля.

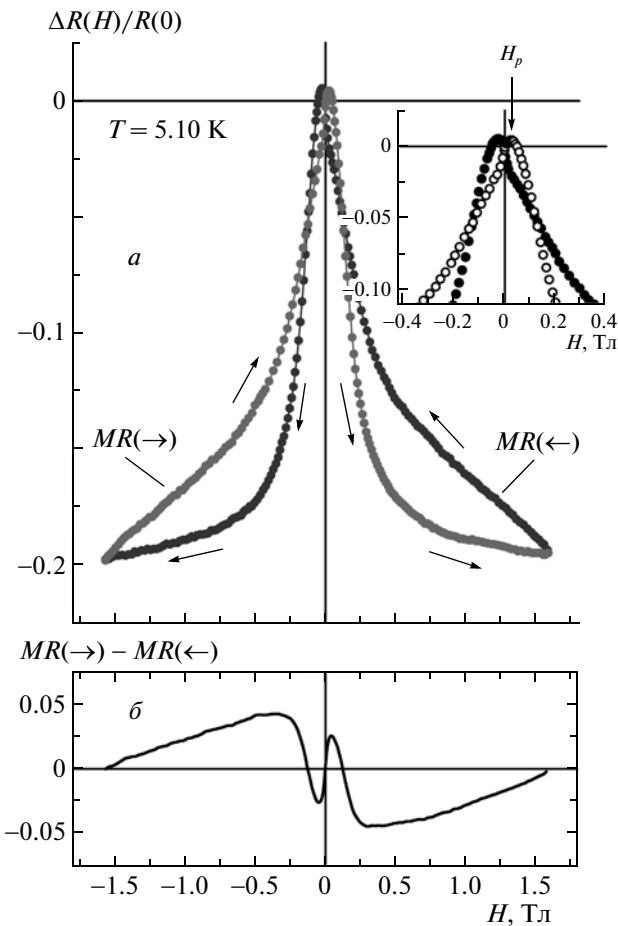


Рис. 2. *a* – кривые МС при $T = 5.1$ К; вставка показывает поведение МС в области малых полей; пик положительного МС в поле H_p показан стрелкой; *б* – зависимость от магнитного поля разности между кривыми $MR(\rightarrow)$ и $MR(\leftarrow)$ для противоположных направлений разворачивания поля.

МС в поле $H = 1.2$ Тл описывается выражением $-[R(H) - R(0)]/R(0) \propto \exp(T/T_{mr})$, где $T_{mr} \approx 45$ К. Такое гигантское МС и его быстрое падение с повышением температуры – признаки магнитного туннелирования между гранулами с высокой спиновой поляризацией [1, 3].

Магнитополевые зависимости МС были записаны в области температур (5–300) К аналогично обычной процедуре измерений гистерезисных циклов намагниченности. Обнаружено принципиально различное поведение МС в области низких и сравнительно высоких (выше 15 К) температур. На рис. 2 и 3 представлены результаты измерения МС при 5.1 и 15.04 К соответственно. Обозначения $MR(\leftarrow)$ и $MR(\rightarrow)$ соответствуют изменению поля от $+H_{max}$ до $-H_{max}$ и от $-H_{max}$ до $+H_{max}$. На обоих графиках в области малых полей обнаружены два не очень больших пика положительного МС, расположенных симметрично относительно $H = 0$ (при $H = H_p$ и $H = -H_p$). Гистерезис такого типа характерен для ТМС гранулированных половинных металлов. В этом случае кривые МС отражают гистерезисные циклы на-

магнитности [3], поэтому сопротивление должно быть максимально в размагниченном состоянии образца, т.е. при $H = H_c$ или $-H_c$, где H_c – коэрцитивная сила. Таким образом, ожидается выполнение соотношения $H_p \approx H_c$. Это соотношение действительно обнаружено для некоторых гранулированных систем с ТМС, включая пресованный порошок CrO_2 [3, 4]. По мере увеличения намагниченности с ростом поля увеличивается количество соседних гранул, в которых ориентация магнитных моментов совпадает, и это приводит к увеличению отрицательного МС. Ожидается, что когда M приблизится к значению насыщения M_s , МС тоже достигнет насыщения. Тенденция к такому поведению имела место при достаточно низкой температуре (рис. 2).

Простую корреляцию [3] между гистерезисным поведением $R(H)$ и $M(H)$ для исследованных образцов наблюдали только при достаточно высоких температурах (рис. 3). Здесь кривые МС, взятые при разных направлениях ввода поля [$MR(\leftarrow)$ и $MR(\rightarrow)$] при достаточно высоких полях сливаются вместе так же, как и соответствующие гистерезисные кривые $M(H)$. Однако при низких температурах (ниже 15 К) в полях ненамного выше $|H_p|$ (рис. 2) ясно виден дополнительный гистерезисный эффект (пересечение кривых $MR(\leftarrow)$ и $MR(\rightarrow)$). Этот эффект не согласуется с простой модельной картиной для единичного магнитного туннельного контакта. Это неудивительно, поскольку в реальных гранулированных металлах проводимость определяется наличием “оптимальных” цепочек гранул с максимальной вероятностью туннелирования между соседними парами гранул, образующих цепочку. В условиях активационной проводимости количество проводящих цепочек уменьшается с понижением температуры, так что при достаточно низкой температуре перколяционная сетка может даже свестись к единственному проводящему каналу [6]. Эти “оптимальные” каналы имеют несколько слабых связей (высокорезистивные туннельные контакты) с повышенной энергией активации, которые и определяют активационный характер общей измеренной проводимости. В гранулированных системах половинного металла вероятность туннелирования зависит не только от свойств изолирующих межгранульных барьеров, но и от взаимной ориентации магнитных моментов в соседних гранулах. Ясно, что при фиксированной температуре пространственное расположение “оптимальных” цепочек гранул с максимальной проводимостью (и положение высокорезистивного контакта, который определяет полное сопротивление системы внутри таких звеньев) непрерывно меняется с изменением внешнего магнитного поля. Кроме того, при приложении внешнего магнитного поля открываются до-

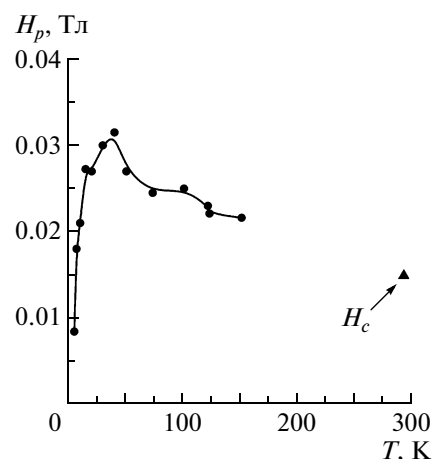


Рис. 4. Температурная зависимость магнитного поля H_p , соответствующего максимуму положительного МС. Символ \blacktriangle показывает положение коэрцитивной силы H_c , полученное из измерений гистерезиса намагниченности.

полнительные транспортные каналы [7] – это причина возникновения гигантского МС в таких перколяционных системах. Дополнительный гистерезис МС (рис. 2) в области полей выше H_p , очевидно, возникает в условиях переключения небольшого числа перколяционных токовых каналов при достаточно низких температурах. Это может указывать на то, что в этой области полей меняющаяся последовательность перколяционных токовых каналов различна при вводе и выводе магнитного поля. Обычно полагают [6], что энергия активации определяется главным образом энергией кулоновской зарядки $E_c = e^2/kd$, где k – эффективная диэлектрическая константа, а d – средний диаметр зерна. Если для пресованного порошка CrO_2 положить $k = 5$ [4], $d \approx 120$ нм, энергия зарядки составит 28 К. В этой связи неудивительно, что, как отмечено выше, зависимость $R(T)$ близка к экспоненциальной только для $T < 20$ К. В любом случае рост температуры приводит к увеличению эффективного количества токовых путей через образец и поэтому к более однородному распределению тока внутри образца [6, 7]. В этом случае проводимость в магнитном поле определяется магнитным состоянием намного большего числа гранул, чем в случае существования только нескольких токовых путей, как при низких температурах, поэтому гистерезисное поведение $R(H)$ и $M(H)$ при высоких температурах скоррелировано ожидаемым образом. Существование дополнительных гистерезисов МС в низкотемпературной области (рис. 2) сопровождается специфическим поведением характерного поля H_p . С ростом температуры $H_p(T)$ сначала увеличивается, а затем (выше 30 К) уменьшается (рис. 4). Уменьшение H_p с пониже-

нием температуры ниже 30 К (рис. 4) является неожиданным в довольно однородных порошковых системах и, очевидно, тесно связано со специфической неоднородностью структуры изучаемой системы и перколяционным характером проводимости. В гранулированных системах при достаточно низкой температуре существует только небольшое число проводящих путей. Это “оптимальные” каналы, состоящие из зерен с максимальной проводимостью, и очень вероятно, что они состоят преимущественно из зерен большого размера. Такие зерна являются многодоменными с более низкой коэрцитивной силой H_c [8]. Это может объяснить неожиданное поведение $H_p(T)$ в низкотемпературной области (рис. 4).

Итак, резистивные и магниторезистивные свойства образца соответствуют поведению магнитных гранулированных систем со слабым обменным взаимодействием между отдельными зернами. Большое МС в низкотемпературной области хорошо описывается спин-зависимым межгранульным туннелированием. Некоторые особенности поведения МС в низкотемпературной области ($T < 40$ К), без сомнения, можно при-

писать перколяционному характеру туннельной проводимости таких гранулированных систем при условии небольшого количества токовых путей через образец.

Работа выполнена при частичной поддержке программы НАН Украины “Nanosystems, nanomaterials, nanotechnologies”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Coey J.M.D. // J. Appl. Phys. 1999. V. 83. P. 5576.
2. Coey J.M.D., Venkatesan M. // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. P. 8345.
3. Ziese M. // Rep. Progr. Phys. 2002. V. 65. P. 143.
4. Coey J.M.D., Berkowitz A.E., Balcells Ll. et al. // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 80. P. 3815.
5. Белевцев Б.И., Далакова Н.В., Осмоловский М.Г. и др. // Тр. XI междунар. симп. ОДРО-11, Ростов-на-Дону – п. Лоо, 2008. Т. 2. С. 132.
6. Sheng P. // Philos. Mag. B. 1992. V. 65. P. 357.
7. Ju S., Cai T.-Y., Li Z.Y. // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 87. P. 172504.
8. Тикадзуми С. Физика ферромагнетизма. М.: Мир, 1987. С. 218.