

# Fe<sub>15.16</sub>Ag<sub>84.84</sub> 金属颗粒膜自旋极化相关的 霍尔效应研究<sup>\*</sup>

陈卫平<sup>1)</sup> 冯尚申<sup>1)</sup> 焦正宽<sup>1)2)</sup>

<sup>1)</sup> 浙江台州学院物理系, 临海 317000)

<sup>2)</sup> 浙江大学物理系, 杭州 310027)

(2002 年 11 月 28 日收到, 2003 年 2 月 17 日收到修改稿)

采用磁控溅射法分别在玻璃和单晶硅衬底上同时制备了 Fe<sub>15.16</sub>Ag<sub>84.84</sub> 金属颗粒膜样品, 并对样品的霍尔效应和霍尔系数  $R_H$  随外加磁场  $H$  的变化关系进行了实验研究. 观察到霍尔电压  $U_H$  与外加磁场  $H$  的关系曲线呈现出自旋极化相关的反常现象, 并与其磁电阻效应具有对应关系. 基于自旋相关的散射理论对此作出了合理的解释.

关键词: 颗粒膜, 霍尔效应, 特征磁场  $H_c$ , 自旋相关散射

PACC: 7570, 7360

## 1. 引言

颗粒膜是以铁磁性微颗粒的形式嵌于另一种互不固溶的基体中而形成的复合膜, 它具有微颗粒和薄膜双重特性并呈交互作用效应. 原则上, 在平衡态下任意不相固溶的两种组元, 均可采用共溅射和共蒸发等工艺制备颗粒膜, 还可以通过控制组成比例及制备工艺获得纳米量级颗粒尺寸的颗粒膜. 颗粒膜丰富的异相界面对电子输运性质、磁、光学性质具有显著的影响, 使其显示出大块粗晶材料所不具备的许多新特性, 尤其是巨磁电阻(GMR)效应最为引人注目. 自从 1988 年 Fert 科研组首先在 Fe/Cr 多层膜中发现了 GMR 效应后<sup>[1]</sup>, 鉴于 GMR 效应在基础研究和实际应用中的重要性, 对其研究自然受到人们广泛的重视. 正是在多层膜 GMR 效应研究的启发下, 1992 年, Chien 和 Berkowitz 科研组<sup>[2,3]</sup>利用两种平衡态下互不固溶的磁性和非磁性金属(Co/Cu 和 Co/Ag), 通过蒸发法首先获得亚稳均质合金膜, 然后进行高温退火处理使之发生相分离, 从而获得粒径约为 1—20 nm 的磁性金属颗粒膜. 实验发现, Co/Cu 和 Co/Ag 金属颗粒膜中也存在 GMR 效应, 并认为它是一特殊形态下的多层膜 GMR 效应. 这一新发现无疑为 GMR 效应的机理及其应用研究开辟了新途径,

而且由于颗粒膜的制备工艺比多层膜的制备要简便而备受青睐, 因此, 近几年来对纳米颗粒膜各种性质的研究引起了人们极大的兴趣, 并在颗粒膜的 GMR 效应、磁性、磁光性质和热电功率等方面取得了一些研究成果<sup>[4-9]</sup>, 但对具有 GMR 效应颗粒膜的霍尔效应研究则尚未见报道. 因而, 我们希望通过 Fe/Ag 金属颗粒膜霍尔效应的研究, 弄清 GMR 与霍尔效应间的关联效应.

本文采用射频磁控溅射方法, 并通过适当的原位退火处理, 在相同的制备条件下同时获得分别沉积在玻璃和单晶硅衬底上的 Fe<sub>15.16</sub>Ag<sub>84.84</sub> 磁性颗粒膜样品, 测量了样品的霍尔效应. 发现霍尔电压  $U_H$  与外加磁场  $H$  的关系并不完全满足  $U_H = R_H IH/d$  这一霍尔关系. 在  $U_H$  与  $H$  测量数据拟合的实验曲线上, 当外磁场从零增至特征场  $H_c$ (0.2 T) 时, 霍尔电压和霍尔系数急剧增加, 特别是这种反常现象与 GMR 具有极好的对应关系. 我们认为这是自旋相关散射<sup>[10,11]</sup>的反映.

## 2. 样品制备与测量

实验使用 FJL-450 磁控与离子束复合溅射仪, 采用射频磁控溅射法, 将 Fe、Ag 共溅射沉积到玻璃

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号: 10274070)和国家重点基础研究发展规划(批准号: G19990646-02)资助的课题.

和单晶硅衬底上,再经原位退火获得  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  纳米颗粒膜.溅射靶是将银片镶嵌在直径 81 mm 的圆片上制成复合靶.铁片与银片的纯度分别为 99.99% 和 99.999%.玻璃和单晶硅衬底放在同时能够获得最大沉积率的位置,以达到稳定的溅射状态.溅射时在  $3.5 \times 10^{-3}$  Pa 背景真空度下,通入纯度为 99.999% 的 Ar 气,并使 Ar 气压稳定在 0.2 Pa,溅射功率为 30 W,溅射速率为 30 nm/s.薄膜的颗粒度由衬底温度和原位退火温度及退火时间来控制.样品是在  $3 \times 10^{-3}$  Pa 真空中 525 K 下退火 20 min,然后随炉冷却至室温 (296 K) 得到.颗粒膜的厚度通过溅射时间的长短来调制.样品厚度是由 Dektak 3 型台阶仪测定,测得样品厚度  $d$  为 900 nm.溅射速率则由台阶仪测量一定时间内膜的厚度后计算得出.颗粒膜的组分通过改变靶上银片的镶嵌数量来控制,样品的成分含量是通过 EDAX 测得.霍尔电压的测量采用直流四电极法.测量电流为 1 mA,由 LaKeshore Cryotronics 120 恒流源提供,外加磁场由单片机控制的水冷磁体产生.测量霍尔电压还使用了 Keithley 181 纳伏表.为了消除由于霍尔电极的不对称而引起的纵向电阻对霍尔电压的影响,我们在同一磁场强度下,改变电流方向,分别测量霍尔电压,然后取平均值,即  $U_H = (|U_+| + |U_-|)/2$ .所有的测量均在室温和空气中进行.

### 3. 实验结果与讨论

首先,我们测量了样品的  $R$ - $T$  特性 (图 1).从图 1 可以看出,在本文感兴趣的温区内,样品呈现金属行为而并非半导体行为.

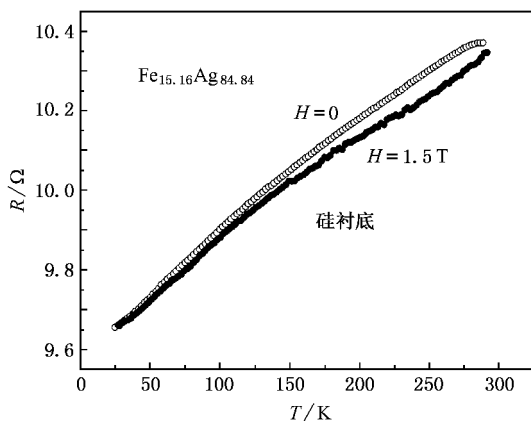


图 1  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  颗粒膜的  $R$ - $T$  特性

图 2 为沉积在玻璃衬底和单晶硅衬底上的  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  颗粒膜样品在室温 (296 K) 下的霍尔电压  $U_H$  与外加磁场  $H$  的关系.从图 2 可以清楚地看出,由实验测量数据拟合的在不同衬底上的两条曲线具有近似相同的形状和相同的特征磁场  $H_c = 0.2$  T.图 2 表明,样品的霍尔电压  $U_H$  随外加磁场  $H$  的增大并非呈单调线性增大的,而是在外磁场  $H$  由零增大到  $H_c$  过程的起始阶段,霍尔电压  $U_H$  随  $H$  的增大而急剧上升.这种反常现象,作者在其他常规金属材料中未发现过,这是具有 GMR 效应的颗粒膜系的特征性质.当外加磁场达到特征值  $H_c$  之后,若继续增大外加磁场  $H$ ,霍尔电压  $U_H$  随外加磁场  $H$  的增大而增大的关系与常规金属材料的霍尔效应情况基本相似,即过临界点  $H_c$  之后,颗粒膜样品的霍尔电压  $U_H$  随外加磁场的变化关系满足  $U_H = R_H IH/d$  这一线性关系.在两种不同衬底上沉积相同成分的  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  颗粒膜具有相同的特征磁场  $H_c$  和完全相似的  $U_H$ - $H$  变化关系.这一实验事实说明,反常霍尔效应现象与衬底材料无关,特别是与磁电阻关系曲线  $R(H)$  完全对应.证明这种反常的霍尔效应与颗粒膜的磁电阻效应源于同一机理,即是自旋相关传导电子的散射效应.下面将对此作出讨论.

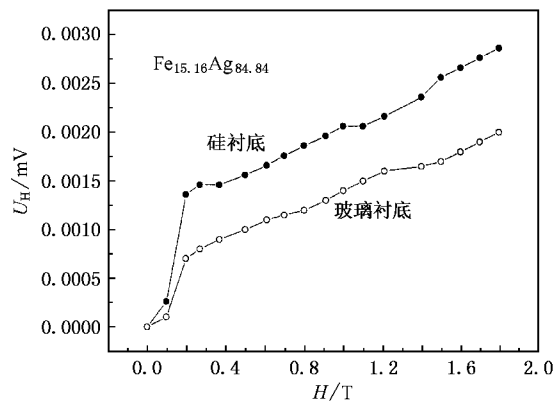


图 2  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  颗粒膜在室温 (296 K) 下的霍尔电压  $U_H$  与外加磁场  $H$  的关系

基于分布函数和玻尔兹曼方程讨论电子输运过程的一般理论,一方面由外界条件(电场  $E$  和磁场  $H$ )所引起的统计分布在  $K$  空间发生“漂移”,使原来对称的分布偏离平衡态,从而形成电流.另一方面电子与声子、杂质、界面等缺陷的碰撞(散射)效应使分布恢复平衡,形成电阻.对于由 3d 过渡金属 Fe、Co 等形成的颗粒膜体系,基于自发磁化的能带模型,3d

与  $4s$  带是交叠在一起的, 而  $3d$  电子是相当局域的, 电子间的交换作用使自旋简并的能带发生分裂, 形成不对称的能带结构. 自旋向上的电子数  $N_+$  比自旋向下的电子数  $N_-$  多, 而电子散射截面与费米面附近的态密度成正比, 从而导致传导电子的散射(电阻)过程是自旋极化相关的. 电阻在铁磁取向远小于反铁磁态. 在外磁场下, 磁性颗粒内或颗粒相邻间的磁化取向从反铁磁取向逐渐向铁磁性过渡并伴随传导电子散射率的下降, 从而引起 GMR 效应.

假设样品置于  $xy$  平面内, 电流沿  $x$  方向, 磁场沿  $z$  方向. 当载流子为电子型时, 由霍尔效应关系式可知, 霍尔电场

$$E_y = -\frac{1}{nq} j_x H_z,$$

式中  $\frac{1}{nq}$  为霍尔系数. 从霍尔效应(图 2、图 3)与磁电阻效应(图 4)的对应关系不难看出, 在外磁场下, 伴随磁场  $H$  的增大颗粒膜的电阻降低, 从而电流密度  $j_x$  增大. 所以导致颗粒膜内霍尔效应也是自旋相关的.

特征场  $H_c$  的物理意义: 从磁畴结构变化的角度, 磁化过程伴随畴壁的移动和磁畴磁矩的转动, 经历畴壁的可逆位移  $\rightarrow$  不可逆磁化  $\rightarrow$  磁畴磁矩的转动  $\rightarrow$  趋于饱和四个阶段. 一般而言, 在磁化的起始可逆位移阶段, 磁感应强度  $B$  随外场的变化速率  $\frac{\partial B}{\partial H}$  是小的; 当进入不可逆磁化阶段, 由于伴生畴壁的不可逆移动即巴克好森跳跃(Barkhausen jump)或磁畴结构的突变, 导致  $\frac{\partial B}{\partial H}$  急剧增大; 进一步增加磁场将通过磁畴磁矩的转动, 才能增加  $B$  值, 从而这一阶段  $\frac{\partial B}{\partial H}$  值又将明显下降. 由图 4 可见,  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  颗粒膜的饱和场  $H_s$  约为 2 T, 而自发磁化取向的急剧变化发生在低场(约 0.2 T)下, 并伴随磁化强度的急剧增大, 磁电阻的急剧下降, 从而导致电流密度  $j_x$  和霍尔电压  $E_y$  在 0.2 T 附近突然增大. 由于实验是在恒温条件下进行的, 所以图 2 中外磁场下霍尔电压的变化规律主要源于传导电子的自旋极化相关散射(GMR). 可以将  $H_c$  理解为  $\frac{\partial B}{\partial H}$  急剧增大的特征磁场, 即发生畴壁从可逆位移向不可逆位移的过渡.

图 3 是分别沉积在玻璃基底和单晶硅基底上  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  磁性颗粒膜的霍尔系数  $R_H$  与外加磁场  $H$

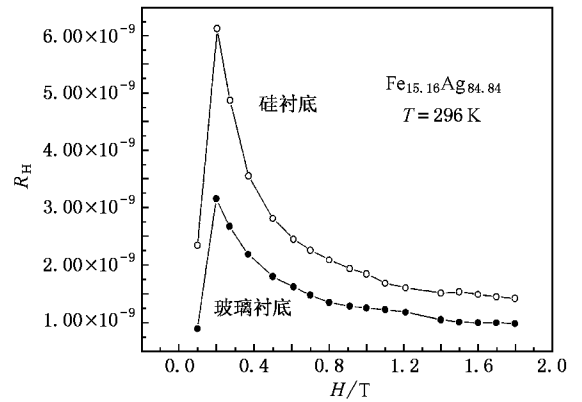


图 3  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  颗粒膜的霍尔系数  $R_H$  与外加磁场  $H$  的关系

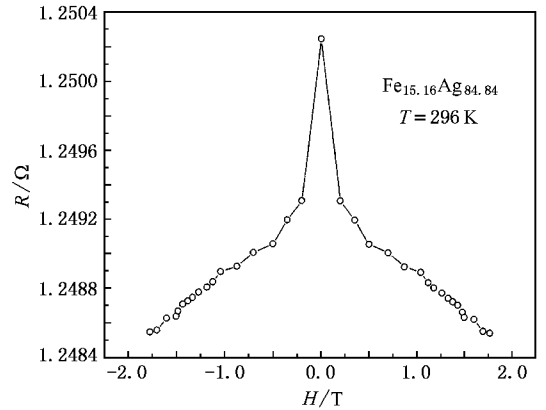


图 4  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  颗粒膜的电阻  $R$  与外加磁场  $H$  的关系

的关系. 由图 3 可见, 这两条曲线也具有相同的形状和相同的特征磁场  $H_c = 0.2$  T. 我们认为, 图 3 反映的非线性  $R_H-H$  关系可能是由于颗粒膜在外磁场中的霍尔效应、磁致伸缩效应和磁电阻效应共同作用的结果. 在外磁场  $H$  从零增加到 0.2 T 过程的起始阶段, 样品在外磁场的作用下产生磁致伸缩效应. 正是这种磁致伸缩效应引起铁磁性颗粒边界发生变化, 从而导致部分载流子被边界陷阱所俘获, 并在边界区域产生空间电荷形成边界势垒, 结果使得载流子浓度随着激活能和势垒高度的增加而降低. 同时, 霍尔效应又将使沿外电场方向的载流子浓度有所降低, 降低的原因在于载流子速度的统计分布引起了具有某些速度的电子沿霍尔电场方向偏转, 从而减少了沿外电场方向的载流子浓度. 另外, 虽然由于磁致电阻效应(可参见图 4 由实验得到的样品电阻  $R$  随外磁场  $H$  的变化曲线), 将因样品的电阻随外磁场  $H$  的增大而减小所引起载流子浓度随之增大. 因为霍尔系数  $R_H$  与载流子浓度  $n$  呈反比:  $R_H = 1/nq$ ,

$q$  为载流子的电量, 所以造成起始阶段颗粒膜的霍尔系数  $R_H$  随外磁场  $H$  的增加而显著增大的关系. 当外加磁场  $H$  过临界点  $H_c$  之后继续增大时, 磁致伸缩已逐渐趋于饱和状态. 虽然此时霍尔效应仍然存在, 但由于颗粒膜的  $\frac{\partial B}{\partial H}$  已开始下降, 霍尔效应有较大减弱. 然而磁致电阻效应则成为引起颗粒膜中载流子浓度随外磁场  $H$  的增加而增大的主要因素. Fe<sub>15.16</sub>Ag<sub>84.84</sub> 颗粒膜的  $R_H$ - $H$  的依赖关系特别是特征磁场  $H_c$  的物理意义还有待于深入的实验和理论研究.

## 4. 结 论

通过对 Fe<sub>15.16</sub>Ag<sub>84.84</sub> 颗粒膜的霍尔系数  $R_H$  随外

磁场  $H$  的变化关系的分析和讨论, 可以得出如下主要结论:

采用磁控溅射方法分别在玻璃和单晶硅基底上制备的 Fe<sub>15.16</sub>Ag<sub>84.84</sub> 纳米颗粒膜具有相同的特征磁场  $H_c = 0.2$  T 和完全相似而异常的  $U_H$ - $H$  变化关系. 分析表明, 反常的霍尔效应现象与衬底材料无关, 与颗粒膜中 Fe 颗粒的磁电阻效应和丰富异相界面效应相关联, 是传导电子自旋相关的散射(GMR)引起的. 特征场  $H_c$  可能对应于  $\frac{\partial B}{\partial H}$  发生急剧变化的磁场强度即磁畴由可逆向不可逆位移过程的渡越.

Fe<sub>15.16</sub>Ag<sub>84.84</sub> 纳米颗粒膜独特的非线性  $R_H$ - $H$  关系, 可由磁致伸缩效应、霍尔效应和磁电阻效应共同影响得到解释. 实验表明, Fe/Ag 金属颗粒膜独特的  $R_H$ - $H$  变化规律与基底材料无关.

- [ 1 ] Baibich M N, Brato J M, Fert A *et al* 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [ 2 ] Xiao J Q, Jiang J S, Chien C L 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3749
- [ 3 ] Berkowitz A E, Mitekell J R, Corey M J *et al* 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3745
- [ 4 ] Childress J R, Chien C L 1991 *Appl. Phys.* **70** 5885
- [ 5 ] Peng C B, Zhang S, Li G Z *et al* 1994 *J. Appl. Phys.* **76** 998
- [ 6 ] Wang Z B, Sha J, Ge H L *et al* 1999 *Chin. Sci. Bull.* **44** 272 (in Chinese) [ 汪壮兵、沙 健、葛洪良等 1999 科学通报 **44** 272 ]
- [ 7 ] Xu Q Y, Ni G, Gu K M *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 128 (in Chinese) [ 徐庆宇、倪 刚、谷坤明等 2000 物理学报 **49** 128 ]

- [ 8 ] Wang S Y, Ju X H, Li H Y *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2252 (in Chinese) [ 王松有、巨晓华、李合印等 2001 物理学报 **50** 2252 ]
- [ 9 ] Himpfel F J, Ortega J E, Mankey G J *et al* 1998 *Advances in Physics* **47** 511
- [ 10 ] Cai J W, Zhao J G, Zhan W S *et al* 1997 *Progress in Physics* **17** 119 (in Chinese) [ 蔡建旺、赵见高、詹文山等 1997 物理学进展 **17** 119 ]
- [ 11 ] Zhong W D 1998 *Ferromagnetism* ( Vol. 2 ) ( Beijing : Science Press ) pp181—183 ( in Chinese ) [ 钟文定 1998 铁磁学( 中册 ) ( 北京 : 科学出版社 ) 第 181—183 页 ]

# Spin polarized dependent Hall effect in metallic granular film $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$ \*

Chen Wei-Ping<sup>1)</sup> Feng Shang-Shen<sup>1)</sup> Jiao Zheng-Kuan<sup>1,2)</sup>

<sup>1)</sup>( *Department of Physics , Zhejiang Taizhou College , Linhai 317000 , China* )

<sup>2)</sup>( *Department of Physics , Zhejiang University , Hangzhou 310027 , China* )

( Received 28 November 2002 ; revised manuscript received 17 February 2003 )

## Abstract

We report the preparation of metallic granular film  $\text{Fe}_{15.16}\text{Ag}_{84.84}$  , grown on glass substrate and single crystals silicon substrate respectively , using magnetron sputtering method. The applied field  $H$  dependences of Hall effect and Hall coefficient  $R_H$  in this specimen have been investigated. We observed the spin-dependent scattering anomalous phenomenon in the applied field  $H$  dependence of Hall voltage  $U_H$  , which suggests a corresponding relationship with the magnetoresistance. A proper explanation has been given based on spin-dependent scattering effect or tunneling effect.

**Keywords** : granular film , Hall effect , characteristic field , spin-dependent scattering

**PACC** : 7570 , 7360

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10274070 ) and the State Key Development Program for Basic Research of China ( Grant No. G19990646-02 ).