

# $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$ 颗粒膜中的 Hall 效应\*

倪 刚 陆 钧 徐庆宇 桑 海 都有为

(南京大学固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

(1999 年 6 月 10 日收到; 1999 年 8 月 18 日收到修改稿)

对用离子束溅射制备的  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$  颗粒膜的 Hall 效应进行了研究. 当  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}$  合金的含量为 43 vol% 时, 在  $9.5 \times 10^5 \text{ A/m}$  的外磁场下, 样品的室温 Hall 电阻率达  $6.3 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ , 高于普通磁性金属两个数量级以上. 还研究了不同 NiCo 组分样品的电阻率与温度的关系 (95—300 K), 发现  $x < x_c$  (逾渗组分) 时, 电阻率与  $-\lg T$  成正比, 电阻温度系数为负; 当  $x > x_c$  时, 逐渐呈现金属性; 而当  $x \approx x_c$  时, 为过渡态. 还用透射电子显微镜和振动样品磁强计等手段对样品的微结构和磁性进行了对比研究, 表明金属-绝缘体颗粒膜中在逾渗阈值附近有较大的 Hall 效应, 这与样品的微结构有密切关系.

PACC: 7360H; 7260; 7570

## 1 引 言

1992 年在金属颗粒膜中首次发现了巨磁电阻(GMR)效应<sup>[1]</sup>, 随后又在金属-绝缘体颗粒膜中发现隧道结磁电阻(TMR)<sup>[2]</sup>, 这些与块体材料迥异的性质, 引起了人们对颗粒系统电子传输行为的极大关注. 在 1995 年, Pakhomov 等<sup>[3]</sup>在 Ni-SiO<sub>2</sub> 颗粒膜中发现高达  $200 \mu\Omega \cdot \text{cm}$  的饱和 Hall 电阻率, 这比普通非磁金属的正常 Hall 效应高  $10^6$  倍, 也比磁性金属中的磁性增强 Hall 效应大四个数量级以上, 被称为巨霍尔效应(GHE), 该效应在 NiFe-SiO<sub>2</sub>, Fe-SiO<sub>2</sub> 颗粒膜中也被观察到<sup>[4,5]</sup>. 鉴于在金属-绝缘体颗粒膜中 Hall 效应具有较高灵敏度, 且具有较高温度的稳定性(大于 200 °C)和较大范围内的线性<sup>[6]</sup>, 它有着良好的应用前景, 因而引起人们的重视. 但是其物理机制目前尚未明了, 还有待研究.

本文主要就  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$  颗粒膜系统的 Hall 效应、导电行为、磁性及微结构进行研究, 同时对微结构与 Hall 效应的关系作了初步探讨.

## 2 实 验

$\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$  颗粒膜采用离子束溅射技术制备, 背景真空为  $3 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ , 工作气压为  $2 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ , 沉积速率约为 2 nm/min. 实验所用的是由若干  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}$  合金小块贴在

\* 国家攀登计划(纳米材料科学)(批准号: NMS-07)、国家自然科学基金(批准号: 19890310(4))和江苏省自然科学基金(批准号: BJ97043)资助的课题.

SiO<sub>2</sub> 板上组成的复合靶,可通过调整 NiCo 片的数量和排列来改变薄膜样品中的 NiCo 含量.我们在室温下制备了一系列不同 NiCo 含量的 (Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>x</sub>-(SiO<sub>2</sub>)<sub>1-x</sub> 颗粒膜,采用 EDAX9100 型 X 射线能谱仪测定其中 Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub> 的体积百分比  $x$ ,从  $x=0.1$  到  $x=1.0$ . 样品沉积在盖玻片上,厚度约为 150 nm,由  $\alpha$ -台阶仪测定. Hall 电阻率采用十字交叉的四探针法在  $9.5 \times 10^5$  A/m 的外磁场下测量,膜面垂直于外场,并通过改变磁场或电流方向来消除其他效应.样品电阻率采用传统四探针法测量,温度范围为 95—300 K.磁滞回线用最高磁场达  $1.6 \times 10^6$  A/m 的振动样品磁强计在室温下进行两个方向的测量(磁场平行或垂直膜面).另外,我们还采用透射电子显微镜(TEM)对不同组分的两个样品进行了微结构观察.

### 3 结果及讨论

图 1 为室温下制备态 (Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>)<sub>x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>1-x</sub> ( $x=0.43$ ) 颗粒膜样品的磁滞回线和 Hall 电阻率随外场的变化关系曲线.由图 1 可见, Hall 电阻率  $\rho_{xy}$  在  $9.5 \times 10^5$  A/m 的外场下基本饱和,达  $6.3 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ ,且为负,与洛伦兹力引起的正常 Hall 效应方向相反,而正常 Hall 效应由于数值太小,在图中没有反映出来.由图 1 还可以看出,在  $\pm 2.4 \times 10^5$  A/m 的磁场范围内, Hall 电阻率基本与磁场线性响应,其响应系数为  $2.6 \times 10^{-9} \Omega \cdot \text{m}^2/\text{A}$ .我们将磁场垂直膜面的磁滞回线与  $\rho_{xy}$ - $H$  的关系曲线作对比可以发现,两者的形状极其类似,表明  $\rho_{xy}$  与样品的磁化强度相关,且近似呈线性关系.由此可推测,实验所测得的  $\rho_{xy}$  主要来源于与磁化强度成正比的自旋极化巡游 d 电子的散射<sup>[7]</sup>.这一 Hall 效应,比普通金属中的正常 Hall 效应大  $10^4$  倍,也比磁性金属中的磁性增强 Hall 效应大两个数量级以上.另一方面,从磁场平行膜面的磁滞回线可以看出,并不是稀释颗粒膜系统中所具有的超顺磁性磁滞回线,表明该成分样品中磁性颗粒间存在着较强的磁相互作用.

我们就不同 Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub> 组分的样品在  $9.5 \times 10^5$  A/m 外磁场下进行了 Hall 效应的测量,图 2 为样品的饱和 Hall 电阻率  $\rho_{xy}$  和电阻率与样品中 Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub> 的体积百分比  $x$  的关系曲线.在 Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub>-SiO<sub>2</sub> 颗粒膜中, Hall 效应与磁性金属组分具有强烈的相关性,当  $x$  较低时,  $\rho_{xy}$  较小;当 Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub> 含量增大时, Hall 效应也逐渐增强;在临近逾渗阈值时, Hall 效应显著增强,在  $x=0.43$  时,  $\rho_{xy}$  达到最大值  $6.3 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ ;越过逾渗阈值后, Hall 效应开始迅速下降.与此同时,样品的电阻率随着成分的增加而迅速减小,尤其在临近逾渗阈值时,电阻率则是更陡地下降.从电阻率的量值可以看出,随着成分的增加,颗粒膜从导电绝缘转变到良好的金属导电性.而  $x=0.40$ — $0.43$ ,这正是临近逾渗阈值的区域,我们发现在这一区域, Hall 电阻率与导电性同时发生突变,这表明在样品中电子的运输情况发生了很大的改变,金属颗粒间电子的导电通道开始形成并迅速增多,宏观 Hall 效应所必须的巡游载流子迅速增多,但其密度对金属而言依然低许多,这样就提供了一个对于 Hall 效应最恰当的载流子密度.另一方面,由于在磁性金属中存在着磁性增强的 Hall 效应, Hall 电阻与磁化强度相关,其来源于自旋极化巡游 d 电子的散射,而狭窄导电通道的迅速增多,导致散射的增强,从而引起 Hall 电阻率的突然增加.

我们还对不同组分颗粒膜系统的导电行为进行了研究,图 3 是三个不同 Ni<sub>0.8</sub>Co<sub>0.2</sub> 含

量样品的电阻率与温度的关系曲线, 其中  $x$  轴为  $T$  的对数坐标. 三个样品的 NiCo 含量分别是  $x = 0.20, 0.43, 0.82$ , 其对应的  $\rho_{xy}$  依次为  $1.5, 6.3, 0.2 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ , 电阻率  $\rho_{xx}$  分别为  $125, 1.54, 0.19 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ . 从图 3 可以看出, 当  $x = 0.20$  时,  $\rho_{xx} \approx -\lg T$ , 且电阻温度系数为负值, 表现为电子热激发导电性. 当  $x = 0.82$  时, 电阻温度系数为正, 为典型的金属导电性. 而当  $x = 0.43$  时, 电阻率随温度上升基本没有变化. 从放大图(图 3 中的小插图)可以看出, 其在低温时呈现热激发导电性, 而在高温(靠近室温)时, 表现为类金属导电性, 该成分样品恰处于从热激发导电态到金属导电态的过渡区域, 这从导电的物理机制上表明, 该样品正好处于逾渗阈值附近.

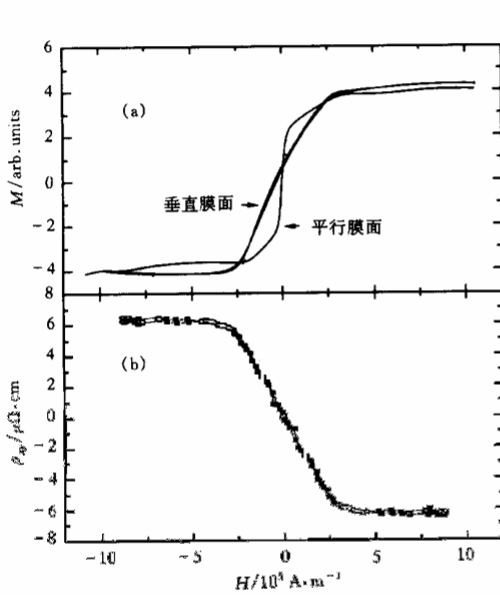


图 1  $(\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{0.43}\text{-}(\text{SiO}_2)_{0.57}$  颗粒膜样品的磁滞回线(a)和 Hall 电阻率随外场的变化关系曲线(b)

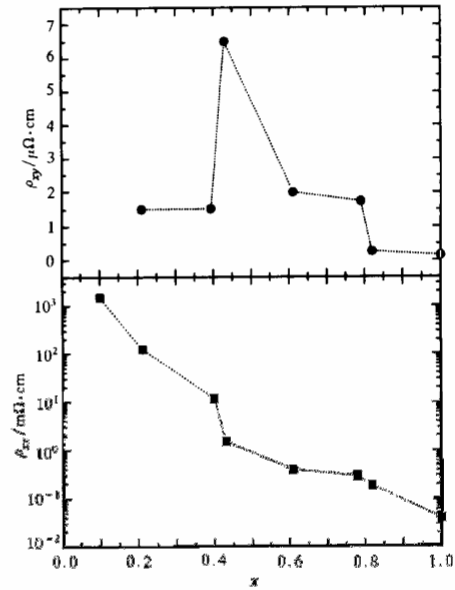


图 2  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$  颗粒膜中的 Hall 电阻率和电阻率与  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}$  体积百分比的关系曲线

为了研究电子传输行为与微结构的关系, 我们用 TEM 对两个不同 NiCo 含量的样品进行了观察. 样品沉积在有火棉胶支撑的铜网上, 厚度约为  $30 \text{ nm}$ , 未经过减薄处理. 图 4 即为 NiCo 体积百分比  $x$  分别为  $0.43$  和  $0.64$  样品的 TEM 明场像. 从图 4 可清晰地看出样品的颗粒结构, NiCo 颗粒以不同形状非均匀地做埋在  $\text{SiO}_2$  基质中, 其颗粒尺寸在  $5 \text{ nm}$  左右. 在  $x = 0.43$  的样品中, 颗粒间有着短程连接, 相邻颗粒连接成一个个小集团, 但整体上尚未形成网络, 处于临近逾渗的状态, 而在  $x = 0.64$  的样品中, 可明显看到 NiCo 颗粒间已越过逾渗阈值而形成网络. 这一结果与图 3 中所揭示的导电行为是一致的, 在低 NiCo 含量的颗粒膜中, 由于没有长程连接, 其导电主要是隧穿机制; 当金属含量逐渐增高到逾渗阈值附近, 金属导电的通道开始逐渐形成, 为隧穿和金属导电的复合机制; 当含量继续增高, 金属颗粒间的导电通道迅速增多, 并逐渐形成网络, 相应的电阻率急剧降低, 转化为金属导电机制. 在磁性金属中的增强 Hall 效应被认为是来源于与磁化强度成正比的自旋极化巡游 d 电子的散射<sup>[7]</sup>, 随着颗粒膜中磁性颗粒含量的增多, 其磁性也由颗粒的超

顺磁性转变为颗粒间强烈相关的类块体磁性, 样品的磁化强度也随之增加, 从而增加 Hall 电阻率, 但实际上由此引起的变化在  $x$  较大时并不明显. 另一方面, 在逾渗阈值附近, 存

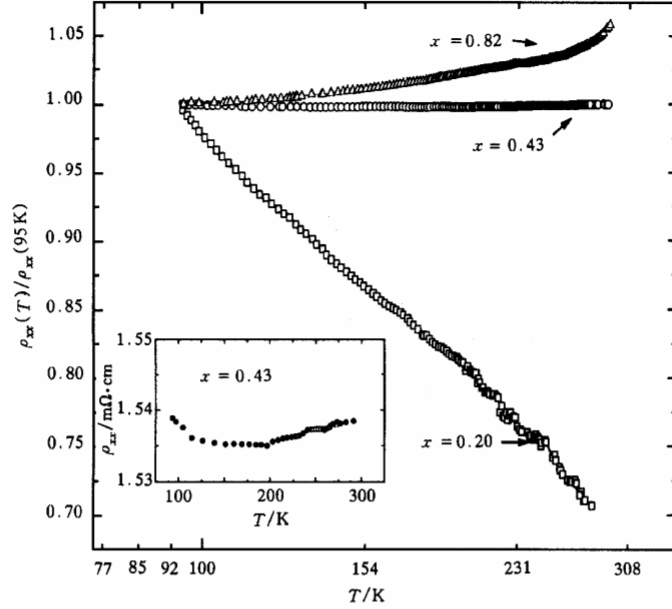


图3 不同 NiCo 含量的样品中归一化电阻率与温度(对数坐标)的关系曲线

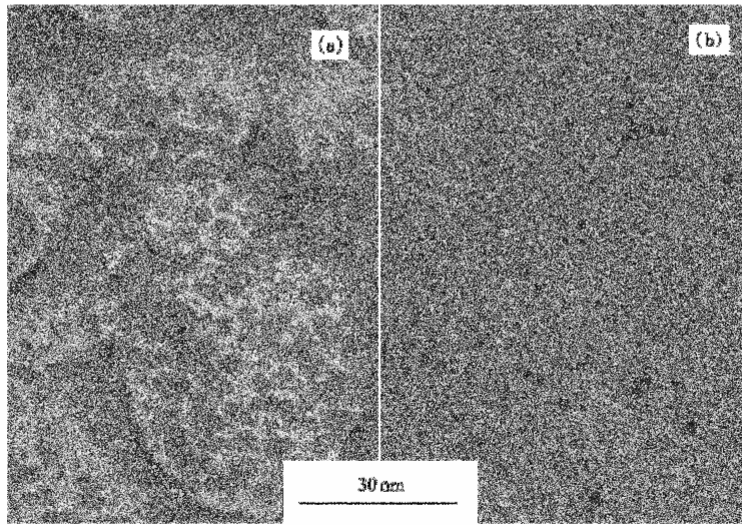


图4  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$  颗粒膜的 TEM 明场像 (a)  $x=0.43$ ; (b)  $x=0.64$

在着较多的有限、狭窄、弯曲、弱连接甚至部分隧穿的导电通道, 这样导致自旋极化电子散射的增强, 从而大大提高了在逾渗阈值金属-绝缘体颗粒膜中的 Hall 效应. 还有, 正如前面所讨论的, 合适的载流子浓度也是 Hall 效应增强的一个可能因素.

## 4 结 论

本文主要研究了采用离子束溅射制备的  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$  颗粒膜的 Hall 效应. 当  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}$  合金的体积百分比为 43% 时, 在  $9.5 \times 10^5 \text{ A/m}$  的外磁场下, 样品的室温 Hall 电阻率达  $6.3 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ . 我们还通过测量不同 NiCo 组分样品的电阻率与温度的关系 (95—300 K), 发现不同成分组成的颗粒膜有着相异的导电行为, 随着金属组分的增加, 导电行为由热激发导电型向金属导电型转化, 而在逾渗阈值附近为过渡态. 同时, TEM 的观察结果也表明, 金属-绝缘体颗粒膜中微结构与 Hall 效应相关, 在逾渗阈值附近, 有限、弱连接的导电通道导致自旋极化电子散射的增强, 从而产生较大的 Hall 效应.

- [1] J. Q. Xiao, J. S. Jiang, C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992), 3749.
- [2] T. Furubayashi, I. Nakatani, *J. Appl. Phys.*, **79**(1996), 6258.
- [3] A. B. Pakhomov, X. Yan, B. Zhao, *Appl. Phys. Lett.*, **67**(1995), 3497.
- [4] B. Zhao, X. Yan, *J. Appl. Phys.*, **81**(1997), 4290.
- [5] A. B. Pakhomov, X. Yan, Y. Xu, *J. Appl. Phys.*, **79**(1996), 6140.
- [6] X. N. Jing, X. Yan, *IEEE Trans. Magn.*, **32**(1996), 4974.
- [7] A. Fert, D. K. Lottis, Concise Encyclopedia of Magnetic and Superconducting Materials, ed. J. Evetts (Pergamon, Oxford, New York, 1992), p. 287, and references.

## THE HALL EFFECT IN $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$ GRANULAR FILM\*

NI GANG LU JUN XU QING-YU SANG HAI DU YOU-WEI

(State Key Laboratory of Solid State Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093)

(Received 10 June 1999; revised manuscript received 18 August 1999)

### ABSTRACT

The Hall effect in  $\text{Ni}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{-SiO}_2$  granular films which were fabricated by ion beam sputtering technique was studied. The saturated Hall resistivity reached  $6.3 \mu\Omega \cdot \text{cm}$  in an applied field of  $9.5 \times 10^5 \text{ A/m}$  at room temperature when the NiCo volume fraction  $x$  is near the metal-insulator transition threshold. The temperature dependence of resistivity in these samples with different NiCo compositions was also investigated. It showed  $-\lg T$  dependence in low  $x$  samples, which gradually showed metallic as  $x$  increased. Transmission electron microscopy and vibrating sample magnetometer were used to study the microstructures and magnetic properties, the dependence of transport properties on microstructure was also discussed.

PACC: 7360H; 7260; 7570

\* Project supported by the National "Climbing" Program for Nano-Materials Science of China (Grant No. NMS-07), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19890310(4)), and the Natural Science Foundation of Jiangsu Province (Grant No. BJ97043), China.