

Аномальный эффект Холла в нанокompозитах $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{Al-O})_{100-x}$

Ю. О. Михайловский¹⁾, Д. Е. Меттус, А. П. Казаков, В. Н. Прудников, Ю. Е. Калинин⁺, А. С. Ситников⁺,
А. Гербер^{2)*}, Д. Бартов^{2)*}, А. Б. Грановский

Физический факультет МГУ им. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

⁺ Воронежский государственный технический университет, 394026 Воронеж, Россия

*Raymond and Beverly Sackler Faculty of Exact Sciences, School of Physics and Astronomy,
Tel Aviv University, Ramat Aviv, 69978 Tel Aviv, Israel

Поступила в редакцию 11 марта 2013 г.

На основе измерений сопротивления ρ , магнитосопротивления, полевых зависимостей намагниченности и сопротивления Холла тонких пленок нанокompозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{Al-O})_{1-x}$ исследована концентрационная зависимость коэффициента аномального эффекта Холла (АЭХ) R_s . Показано, что коэффициент АЭХ возрастает более чем на порядок величины при уменьшении доли аморфного ферромагнитного металла x от 60 до 30 и описывается зависимостью $R_s \sim \rho^m$, где $m = 0.46 \pm 0.1$. Коэффициент нормального эффекта Холла при этом увеличивается менее чем на порядок. Обсуждаются механизмы гигантского эффекта Холла в нанокompозитах.

DOI: 10.7868/S0370274X1308008

В последние годы достигнут определенный прогресс в понимании механизмов аномального эффекта Холла (АЭХ) в однородных ферромагнитных металлах и металлических сплавах [1, 2]. Тем не менее поведение АЭХ в высокорезистивных системах, будь то гранулированные сплавы ферромагнитный металл-диэлектрик [3–5], сплавы Гейслера [6] или пленки магнетита (см. [1]), не нашло адекватного объяснения.

Наиболее ярким примером противоречий современной теории АЭХ с экспериментом является обнаруженный в 1995 г. [3] гигантский эффект Холла в наногранулированных сплавах ферромагнитный металл-диэлектрик, также называемых нанокompозитами или герметами. Суть его состоит в том, что при постепенном уменьшении концентрации ферромагнитного металла сопротивление Холла в пленках нанокompозитов увеличивается и при приближении к порогу перколяции резко возрастает. При этом сопротивление АЭХ на 3–4 порядка величины превышает сопротивление АЭХ исходного чистого металла. Здесь следует отметить, что в рамках теории эффективной среды [7] коэффициенты нормального или аномального Холла могут быть только в 6 раз больше, а в рамках клас-

сической теории перколяции для пленок толщиной в несколько микрон – только в 10–30 раз больше [3] коэффициента Холла исходного металла. Более того, в работах [3–5, 8, 9] для пленок нанокompозитов $\text{Ni}_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$, $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$, $\text{Fe}_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$, $(\text{Fe}_y\text{Mn}_{1-y})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ показано, что ни концентрационная, ни температурная зависимости сопротивления АЭХ не описываются в рамках известных механизмов асимметричного рассеяния, бокового смещения и фазы Берри [1].

В данной работе приводятся экспериментальные данные о намагниченности, сопротивлении, магнитосопротивлении, сопротивлении Холла в нанокompозитах $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{Al-O})_{100-x}$ типа аморфный ферромагнитный металл-диэлектрик при комнатной температуре. Выбор такой сравнительно новой системы связан с выяснением механизмов усиления АЭХ в нанокompозитах. В $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{Al-O})_{100-x}$ за счет слабого окисления ферромагнитных гранул и отличия матрицы от строго стехиометрического состава Al_2O_3 переход металл-диэлектрик “размыт”. Следовательно, система заведомо не является традиционной перколяционной системой. Таким способом можно практически исключить как значительное усиление нормального эффекта Холла (НЭХ), найденное в парамагнитных нанокompозитах вблизи порога перколяции [10], так и геометрический фактор усиления АЭХ за счет образования бесконечно-

¹⁾e-mail: mikhaylovskiy.yuriy@gmail.com

²⁾A. Gerber, D. Bartov

го перколяционного кластера. Кроме того, высокая резистивность (100–150 мкОм·см) аморфного ферромагнетика, являющегося материалом ферромагнитных гранул, и, следовательно, малая длина свободного пробега носителей тока в гранулах, по оценкам не превышающая 3.0 нм при комнатной температуре, обуславливают значительное подавление классического размерного эффекта, рассматриваемого как один из наиболее важных факторов усиления АЭХ в гранулированных сплавах [11]. Нам удалось получить концентрационную зависимость коэффициента АЭХ в данной системе и показать, что она на качественном уровне совпадает с выводами теории АЭХ при прыжковом переносе в модели Миллера–Абрахамса [12].

Исследованные в работе композиты были получены ионно-лучевым распылением составных мишеней, представляющих собой металлическую основу сплава $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$, на поверхности которой было размещено несколько пластин оксида алюминия. Все особенности данного метода, позволяющего в одном технологическом цикле получать композиционные системы с непрерывно изменяющимся в широких пределах соотношением металлической и диэлектрической фаз в зависимости от положения подложки относительно мишени, приведены в работах [13, 14]. Осаждение композита производилось на ситалловые подложки, температура которых в процессе напыления не превышала 393 К. Толщина полученных образцов измерялась интерференционным методом. Она составила около 2.7 мкм. Элементный состав пленок определялся с использованием энергодисперсионной рентгеновской приставки Oxford INCA Energy 250 на сканирующем электронном микроскопе JEOL JSM-6380 LV. Согласно данным электронной микроскопии и рентгеновской дифракции (детали см. в [14]) форма таких гранул близка к сферической, их размер не превышает 2–3 нм и даже при большом содержании металла ($x = 60$) гранулы разделены тонкой диэлектрической прослойкой Al–O толщиной около 1.0 нм.

После получения композитов с применением фотолитографии были изготовлены образцы в стандартной форме двойного креста для измерения электрической проводимости и эффекта Холла. Ширина проводящего канала $W = 1.3$ мм, длина $L = 4$ мм. Длина и ширина выступов (зондов) на боковых гранях образца 1.7 и 0.5 мм соответственно. Расстояние между ними 1 мм.

Измерения намагниченности были проведены с помощью вибрационного магнитометра (Lake Shore) с чувствительностью 10^{-6} едц в полях до 15 кЭ.

Сопротивление Холла ρ_H в ферромагнетиках обычно представляется в виде суммы двух членов:

$$\rho_H = R_0 B_z + 4\pi R_s M_z, \quad (1)$$

первый из которых описывает НЭХ, обусловленный действием силы Лоренца, а второй характеризует АЭХ, связанный с действием спин-орбитального взаимодействия (СОВ). Здесь M_z – компонента намагниченности вдоль оси Z , B_z – компонента магнитной индукции:

$$B_z = H_z + 4\pi M_z(1 - N), \quad (2)$$

где $0 \leq N \leq 1$ – размагничивающий фактор образца, R_0 и R_s – константы НЭХ и АЭХ:

$$R_s = \frac{\sigma_{xy}(M_z)}{4\pi M_z(\sigma_{xx} + \sigma_{xy})^2} \approx \frac{\sigma_{xy}(M_z)}{4\pi M_z} \rho^2, \quad (3)$$

$$R_0 = \frac{\sigma_{xy}(B_z)}{B_z(\sigma_{xx} + \sigma_{xy})^2} \approx \frac{\sigma_{xy}(B_z)}{B_z} \rho^2,$$

где σ_{xy} недиагональная проводимость, как правило много меньшая диагональной проводимости σ_{xx} , а $\rho = 1/\sigma_{xx}$ – электросопротивление. Для пленочной геометрии, когда внешнее магнитное поле приложено перпендикулярно поверхности пленки, размагничивающий фактор равен 1. Поэтому в полях, меньших поля насыщения, когда намагниченность практически линейно возрастает, имеем

$$\frac{\partial \rho_H}{\partial H_z} = R_0 + 4\pi R_s \frac{\partial M_z}{\partial H_z}. \quad (4)$$

Так как во всех известных случаях (кроме сплавов при концентрациях, при которых коэффициент АЭХ меняет знак) коэффициент АЭХ на один-два порядка больше коэффициента НЭХ, по начальному наклону кривой полевой зависимости сопротивления Холла (4) можно достаточно надежно определить коэффициент АЭХ. В данной работе используется именно такой метод. Стандартный метод нахождения коэффициента НЭХ требует измерений для гранулированных сплавов сопротивления Холла и намагниченности в сверхсильных полях, составляющих более 20–30 кЭ [3–5]. При этом точность его определения остается невысокой в силу парапроцесса. В данной работе для нахождения коэффициента НЭХ используется прямое сопоставление полевой зависимости сопротивления Холла, описываемой выражением (1), и полевой зависимости намагниченности с учетом найденного предварительно коэффициента АЭХ. Такой метод недавно успешно использовался нами при разделении коэффициентов АЭХ и НЭХ в сплавах Гейслера [6]. Измеренные полевые зависимости намагниченности и сопротивления Холла, используемые для такого анализа, приведены на рис. 1 и 2.

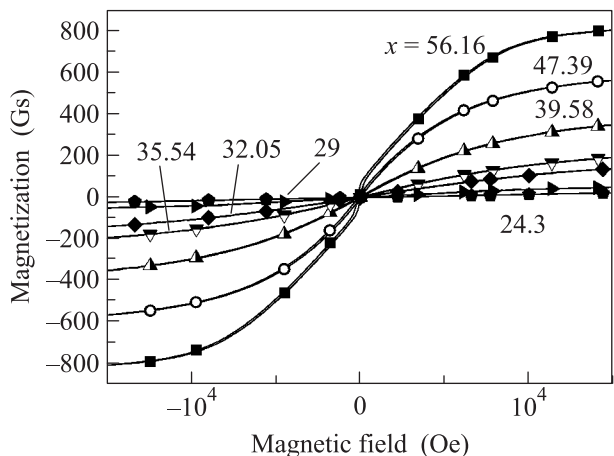


Рис. 1. Зависимость намагниченности различных образцов от внешнего магнитного поля

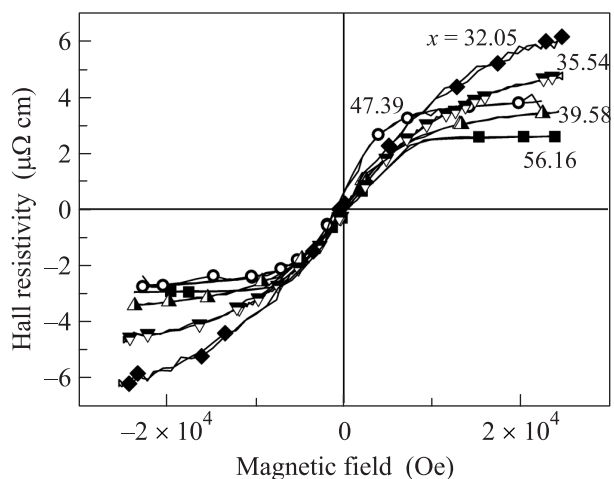


Рис. 2. Зависимость сопротивления Холла для различных образцов от внешнего магнитного поля

При большой концентрации металла ($x = 50-60$) получаемая полевая зависимость намагниченности (рис. 1) характерна для ферромагнетика. Она легко насыщается в средних полях. Таким образом, имеет место достаточно сильное обменное и дипольное взаимодействие между отдельными гранулами и магнитные моменты гранул коррелированы. При уменьшении объемной доли металла полевые зависимости намагниченности все больше приближаются к ланжевеновскому виду, типичному для ансамбля слабо взаимодействующих суперпарамагнитных частиц (рис. 1). Сопротивление (рис. 3) при уменьшении доли металла монотонно возрастает, что, очевидно, связано с увеличением средней толщины диэлектрической прослойки. Порядок величины сопротивления типичен для наноконпозитов, но при тех же концентрациях металла ($x = 50-60$) значитель-

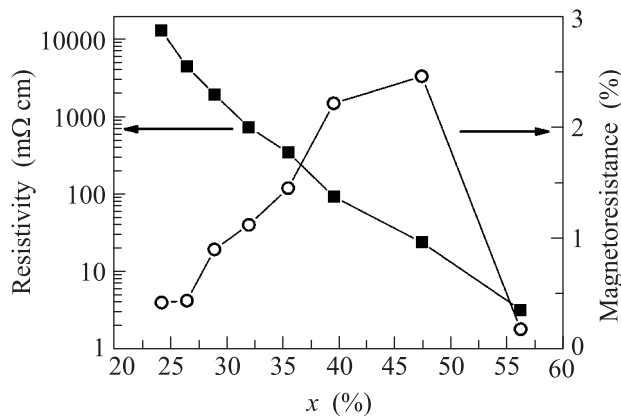


Рис. 3. Зависимость сопротивления (черные квадраты) и магнитосопротивления в поле 1.5 Тл (белые круги) от концентрации металла

но меньше, чем в $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$ или $Co_x(SiO_2)_{100-x}$ [4]. Это связано с тем, что матрица не является хорошим диэлектриком. Вблизи порога перколяции в $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$ и $Co_x(SiO_2)_{100-x}$, соответствующего $x \sim 50$, сопротивление этих наноконпозитов составляет 100 Ом-см, что на порядок величины больше, чем для исследованных сплавов с $x = 30$. Интересно поведение магнитосопротивления (рис. 3). Величина указанного эффекта оказалась достаточно большой для широкого диапазона составов (до 2.5% в поле 1.5 Тл). Это соответствует данным по намагниченности (рис. 1) и микроструктуре сплавов. Действительно, туннельный тип магнитосопротивления существует только в том случае, когда магнитные моменты гранул в отсутствие поля разориентированы, и только тогда, когда барьер между гранулами имеет сравнительно малую по сравнению со спин-диффузионной длиной толщину. Следовательно, магнитосопротивление должно стремиться к нулевому значению при $x > 60$ (магнитные моменты соседних гранул практически параллельны) и при $x < 20$ (расстояние между гранулами больше их размера), достигая максимального значения в середине этого концентрационного интервала. Принято считать, что туннельное магнитосопротивление максимально вблизи порога перколяции. Однако в данном случае, когда максимум магнитосопротивления наблюдается при $x \sim 50$, система не проявляет перколяционного поведения. Это хорошо видно из данных по сопротивлению.

На рис. 4 представлены концентрационные зависимости коэффициентов АЭХ и НЭХ, а на вставке к нему – зависимость коэффициента АЭХ от сопротивления. Подчеркнем, что здесь приведены данные именно для констант, а не, как в большин-

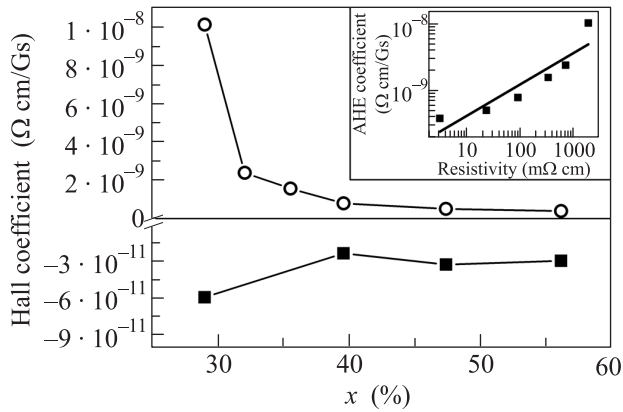


Рис. 4. Зависимость коэффициентов НЭХ (черные квадраты) и АЭХ (белые кружки) от концентрации металла. На вставке приведена зависимость константы АЭХ от сопротивления

стве работ [3–5, 8, 9], данные по сопротивлению АЭХ ($\rho_H^s = 4\pi R_s M_z$) и сопротивлению НЭХ ($\rho_H^0 = R_0 B_z$). В силу зависимости намагниченности от концентрации, температуры и поля анализ АЭХ в терминах сопротивления АЭХ (или проводимости АЭХ, $\sigma_{xy}^s = 4\pi R_s M_z / \rho^2$) представляется менее оправданным. Рассмотрим следствия из представленных данных.

1. При изменении x от 56 до 30 коэффициент АЭХ возрастает в 26 раз, тогда как коэффициент НЭХ – только в 2 раза. Таким образом, усиление НЭХ и АЭХ в нанокompозитах имеет разные причины. Как и во всех известных случаях, усиление НЭХ выражено значительно слабее, чем АЭХ. Если в статье [10] гигантский НЭХ в парамагнитных нанокompозитах связывают с так называемой квантовой перколяцией, то в исследованной системе переход металл-диэлектрик размыт и область квантовой перколяции отсутствует. Поэтому, по-видимому, константа НЭХ возрастает незначительно. Подобное возрастание может быть объяснено чисто геометрическим фактором (см. ниже).

2. Сопротивление АЭХ достигает при $x = 30$ значения $\rho_H^s = 7.0 \text{ мкОм}\cdot\text{см}$ (рис. 2). Это существенно меньше рекордных значений для гигантского АЭХ в перколяционных системах (100–200 мкОм·см [3–5]) в непосредственной окрестности перколяционного перехода. Даже если аппроксимировать кривую с рис. 4 для коэффициента АЭХ на большие сопротивления, т.е. меньшие значения x (непосредственные измерения не позволяют сделать этого большого шума), то и тогда ρ_H^s будет гораздо меньше 100 мкОм·см. При этом коэффициент АЭХ аморфного сплава значительно больше, чем для Ni или Co. Следовательно,

практически исключив два фактора – размерный эффект за счет высокой резистивности аморфного металла гранул и геометрический фактор образования перколяционного кластера – мы получили усиление АЭХ, примерно на порядок меньше, чем в перколяционных системах $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$ и $Co_x(SiO_2)_{100-x}$. Значительная роль размерного эффекта согласуется и с данными работы [15]. В соответствии с ними при отжиге нанокompозитов $Ni_x(SiO_2)_{1-x}$ изменение распределения гранул по размерам с увеличением среднего размера гранул до 4.0–5.0 нм значительно уменьшает сопротивление АЭХ. Однако ответ на вопрос о том, какой фактор является более важным в случае перколяционных систем, остается неясным. Согласно оценкам [16] геометрический фактор приводит к уменьшению эффективной концентрации носителей примерно в 30 раз [17]. Из расчетов [11] следует, что сопротивление Холла линейно-квадратично зависит от отношения длины свободного пробега к радиусу гранул, что может дать усиление того же порядка величины. Возможно, что совокупное действие этих двух факторов и дает усиление порядка 1000, наблюдавшееся в системах $Ni_x(SiO_2)_{100-x}$ и $Co_x(SiO_2)_{100-x}$ [4].

3. Согласно вставке к рис. 4 $R_x \sim \rho^m$, где $m = 0.46 \pm 0.1$. Полученная корреляция относится только к концентрационным зависимостям. В работе [3] также при вариации состава сплава получена корреляция $\rho_H^s = 4\pi R_s M_z \sim \rho^n$, где $n = 0.7$. Учитывая, что намагниченность достаточно слабо изменяется по сравнению с сопротивлением, отличие коэффициентов m и n является весьма существенным. Для корреляции между сопротивлением АЭХ и электросопротивлением при рассмотрении их как функции температуры в литературе для нанокompозитов получены зависимости $\rho_H(T) \sim [\rho(T)]^\alpha$, где $\alpha \approx 2.0$ [3] и 0.6 [8]. В то же время на основе анализа литературных данных в обзоре [1] делается утверждение об универсальной корреляции для высокорезистивных систем вида $\sigma_{xy}^s \sim \sigma^{1.6-1.8}$, что согласно (3) эквивалентно корреляции $R_s \sim \rho^m$ с параметром $m = 0.2-0.4$ (если намагниченность считается слабо зависящей от температуры и концентрации). Применительно к нанокompозитам, которые в обзоре [1] не рассматривались, данная корреляция отнюдь не является универсальной и параметр m различен для разных систем, а также для концентрационных и температурных зависимостей.

В случае прыжковой проводимости в модели Миллера-Абрахамса (т.е. при активационном типе проводимости) в работе [12] для концентрационных зависимостей получено $\sigma_{xy}^s \sim \sigma^{1.5}$, т.е. $m = 0.5$, что

достаточно близко к нашим экспериментальным данным (рис. 4). Однако если характер проводимости не является активационным (см. [18]), то параметр m может значительно отличаться от указанного значения. Это связано с различным характером усреднения по триадам гранул [8, 11].

Таким образом, нам представляется, что природа гигантского АЭХ в перколяционных системах связана как с размерным эффектом, так и с уменьшением эффективного числа носителей при приближении к переходу металл–диэлектрик. Шунтирующее действие металлических гранул и каналов протекания приводит к тому, что носители тока вынуждены многократно рассеиваться внутри гранул и на поверхности, что и вызывает усиление АЭХ. Если гранулы имеют размер наномасштаба, то процесс переноса носит прыжковый характер, который может приводить к разным зависимостям холловской проводимости от обычной проводимости, не имеющим универсального характера.

1. N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda et al., *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1539 (2010).
2. А. В. Ведяев, А. Б. Грановский, О. А. Котельникова, *Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах*, М.: МГУ, 1992, 160 с.
3. A. Pakhomov, X. Yan, and B. Zhao, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 3497 (1995).
4. J. C. Denardin, A. V. Pakhomov, M. Knobel, and X. X. Zhang, *Journ. Magn. Mater.* **262**, 15 (2000).
5. Б. А. Аронзон, Д. Ю. Ковалев, А. Н. Лагарьков и др., *Письма в ЖЭТФ* **70**, 87 (1999).
6. А. Б. Грановский, В. Н. Прудников, А. П. Казаков и др., *ЖЭТФ* **142**(5), 916 (2012).
7. A. V. Granovsky, A. V. Vedyayev, and F. Brouers, *Journ. Magn. Mater.* **136**, 229 (1994).
8. Б. А. Аронзон, А. Б. Грановский, Д. Ю. Ковалев и др., *Письма в ЖЭТФ* **71**, 687 (2000).
9. J. Wang, W. Zou, Zh. Lu et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, 2425 (2007).
10. C. Wan and P. Sheng, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 075309 (2002).
11. А. В. Ведяев, А. Б. Грановский, А. В. Калитов, Ф. Брауэр, *ЖЭТФ* **112**(12), 2198 (1997).
12. А. В. Ведяев, А. Б. Грановский, *ФТТ* **28**, 2310 (1986).
13. Ю. Е. Калинин, А. Н. Ремизов, А. В. Ситников, *ФТТ* **46**, 2076 (2004).
14. О. В. Стогней, А. В. Ситников, Ю. Е. Калинин и др., *ФТТ* **49**, 158 (2007).
15. X. N. Jing, N. Wang, A. V. Pakhomov et al., *Phys. Rev. B* **53**, 14032 (1996).
16. A. V. Pakhomov and X. Yan, *Solid State Comm.* **99**, 139 (1996).
17. A. Pakhomov, X. Yan, and Y. Xu, *J. Appl. Phys.* **79**, 6140 (1996).
18. I. S. Beloborodov, K. B. Efetov, A. V. Lopatin, and V. M. Vinokur, *Rev. Modern Phys.* **79**, 469 (2007).