

МАГНИТОРЕФРАКТИВНЫЙ ЭФФЕКТ В МАГНИТНЫХ НАНОКОМПОЗИТАХ

А. Б. Грановский^{a,*}, И. В. Быков^a, Е. А. Ганьшина^a, В. С. Гуцин^a,
М. Инуе^{b,c,**}, Ю. Е. Калинин^d, А. А. Козлов^a, А. Н. Юрасов^a

^a *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119992, Москва, Россия*

^b *Toyoashi University of Technology
Toyoashi 441-8580, Japan*

^c *CREST, Japan Science & Technology Corporation
Kawaguchi 332-0012, Japan*

^d *Воронежский государственный технический университет
394026, Воронеж, Россия*

Поступила в редакцию 30 декабря 2002 г.

В инфракрасной области спектра в диапазоне от 5 до 20 мкм исследован магниторефрактивный эффект в гранулированных наноструктурах ферромагнитный металл–диэлектрик (CoFeZr)–SiO_n, Co–Al–O, FeSiO_n, (CoFe)–(Mg–F). Величина эффекта для разных наноконструкций изменяется от 0.1 до 1.5 % и сильно зависит от частоты света и магнитосопротивления. Показано, что изменение коэффициента отражения в магнитном поле связано не только с магниторефрактивным эффектом, но и с четным магнитооптическим эффектом. Даны простые выражения для этого эффекта в случае, когда отражение от подложки незначительно, и в случае трехслойной системы диэлектрик–пленка–подложка. Получено выражение для частотной зависимости магниторефрактивного эффекта наноконструкций и проанализированы его особенности при высокочастотном спин-зависящем туннелировании.

PACS: 72.15.Eb, 72.15.Lh, 78.30.Er

1. ВВЕДЕНИЕ

Магниторефрактивный эффект (МРЭ) является частотным аналогом гигантского магнитосопротивления и состоит в изменении коэффициентов отражения R , пропускания T и поглощения A света образцов со значительным магнитосопротивлением при их намагничивании [1, 2].

Традиционные нечетные и четные по намагниченности магнитооптические эффекты (МОЭ) связаны с влиянием спин-орбитального взаимодействия на внутризонные (в ИК-области спектра) или межзонные (в видимой области спектра) оптические переходы. Магниторефрактивный эффект не связан

со спин-орбитальным взаимодействием и обусловлен спин-зависящим рассеянием или туннелированием. В магнитных материалах с гигантским, туннельным или колоссальным магнитосопротивлением проводимость $\sigma(\omega)$ значительно изменяется при намагничивании и поэтому определяющая индексы рефракции диэлектрическая проницаемость

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_r(\omega) - i \frac{4\pi\sigma(\omega)}{\omega},$$

линейно связанная с проводимостью $\sigma(\omega)$, также является функцией приложенного магнитного поля. Здесь $\varepsilon_r(\omega)$ — диэлектрическая проницаемость, учитывающая вклад токов смещения. Магниторефрактивный эффект должен проявляться наиболее ярко в ИК-области спектра, где внутризонные переходы играют доминирующую роль.

*E-mail: granov@magn.ru

**M. Inoue

Следует отметить, что в ИК-области спектра традиционные нечетные и четные по намагниченности магнитооптические эффекты при отражении в ферромагнитных металлах, а также в сплавах и композитах на их основе не превышают 0.01 %, поэтому поиск материалов с большим МРЭ имеет важное практическое значение. Магниторефрактивный эффект можно также использовать для бесконтактного исследования гигантского магнитосопротивления [3]. Наконец, исследование магниторефрактивного эффекта в системах металл–диэлектрик является прямым методом изучения высокочастотного спин-зависимого туннелирования.

Впервые МРЭ был исследован теоретически и экспериментально подтвержден для мультислоев Fe/Cr [1]. Теория МРЭ для металлических мультислоев была также развита в работах [4–6]. Хотя имеются и некоторые несоответствия в результатах этих работ (см., например, обсуждение в [6]) относительно величины и частотной зависимости МРЭ, эффект уверенно наблюдается в ближней ИК-области спектра и при отражении составляет порядка 0.1–0.5 % [1, 6].

Теория МРЭ в гранулированных сплавах металл–металл была построена в работе [2] и недавно модифицирована в [7]. Экспериментально измеренные значения МРЭ для гранулированных систем Co–Ag [3, 7] в достаточно сильных магнитных полях не превысили 1 %. Наиболее простое соотношение для МРЭ металлических систем было получено в [2] для спектральной области Хагена–Рубенса ($\omega\tau \ll 1$, где τ — время релаксации электронов) при нормальном падении света:

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(H=0) - R(H)}{R(H=0)} = -\frac{1}{2}(1-R) \frac{\rho(H=0) - \rho(H)}{\rho(H=0)} = -\frac{1}{2}(1-R) \frac{\Delta\rho}{\rho}. \quad (1)$$

Здесь $R(H=0)$ и $R(H)$ — коэффициенты отражения света образцом в нулевом поле и в магнитном поле H , $\rho(H=0)$ и $\rho(H)$ — электросопротивления соответственно без магнитного поля и в магнитном поле H , $\Delta\rho/\rho$ — абсолютное значение магнитосопротивления. Из выражения (1) следует, что высокие значения МРЭ должны наблюдаться в системах с большим магнитосопротивлением и малым коэффициентом отражения, т.е. не в металлических системах. Действительно, значительный МРЭ был недавно найден в гранулированных пленках металл–диэлектрик Co–Al–O [8, 9] и CoFe–MgF [10].

В настоящей работе предпринята попытка детального исследования МРЭ в магнитных компози-

тах. В разд. 2 дан анализ возможных вкладов в измеряемый коэффициент отражения за счет МРЭ и четных магнитооптических эффектов. Ранее предполагалось (см., например, [1–10]), что изменение коэффициента отражения в магнитном поле и есть МРЭ, что, однако, оправданно, только если МРЭ превышает 0.1 %. В этом же разделе приводятся простые соотношения для расчета МРЭ в модели полубесконечного пространства (диэлектрик–магнитная среда) и трехслойной системы (диэлектрик–магнитная пленка–подложка), анализируются возможные особенности МРЭ при высокочастотном спин-зависимом туннелировании. Здесь необходимо отметить, что выражение (1) заведомо неприменимо к МРЭ нанокompозитов, так как его вывод основан на частотной зависимости металлической проводимости типа Друде–Лоренца. В разд. 3 описаны методы получения образцов, в разд. 4 — методика и детали эксперимента, в частности, модернизированная по сравнению с [8] установка. Затем в разд. 5 приводятся результаты экспериментов для целого ряда нанокompозитов и дается их анализ. Основное внимание при этом уделяется изучению частотной зависимости МРЭ, зависимости сигнала от поляризации излучения, корреляции между МРЭ и магнитосопротивлением, влияния на МРЭ оптических свойств. Наконец, в Заключение приводятся результаты работы.

2. ТЕОРИЯ

Тензор диэлектрической проницаемости намагниченной вдоль оси z среды имеет вид

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}, \quad (2)$$

где из соображений симметрии следует, что $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$, $\epsilon_{yx} = -\epsilon_{xy}$. Недиagonальные компоненты линейны, а диагональные компоненты квадратичны по намагниченности M , т.е.

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_d(1 + bM^2), \quad b = b_a + b_{MRE}, \quad \epsilon_{xy} = aM. \quad (3)$$

Здесь b_a характеризует вклад, обусловленный вынужденной анизотропией магнетика [11–13], а b_{MRE} — вклад МРЭ. Недиagonальные элементы тензора диэлектрической проницаемости ответственны за линейные по намагниченности магнитооптические эффекты Керра и Фарадея, в то время как четный по намагниченности ориентационный магнитооптический эффект [12, 13] связан как с

вкладом $\varepsilon_d b_a M^2$ в диагональные элементы, так и с недиагональными элементами. В силу этого при измерениях МРЭ всегда наряду с истинным МРЭ имеет место и вклад четного магнитооптического эффекта.

2.1. Модель полубесконечного пространства

Рассмотрим сначала случай достаточно толстого образца, чтобы можно было пренебречь отражением от подложки. Для p -поляризованного света, падающего в плоскости xy из прозрачного диэлектрика (среда 1 с действительным коэффициентом преломления n_1) под углом падения ϕ_0 на образец (среда 2 с комплексным коэффициентом преломления $\eta_2 = n_2 - ik_2$), коэффициент отражения R можно записать в виде [14]

$$R = |r_{12}^p|^2, \quad r_{12}^p = \frac{g_1 \eta_2^2 - g_2 n_1^2}{g_1 \eta_2^2 + g_2 n_1^2} - \frac{g_1 \eta_2^2 \varepsilon_{xy}}{g_2 n_1^2 (g_1 \eta_2^2 + g_2 n_1^2)^2}, \quad (4)$$

$$g_1 = \sqrt{n_1^2 - n_1^2 \sin^2 \phi_0}, \quad g_2 = \sqrt{\eta_2^2 - n_1^2 \sin^2 \phi_0}. \quad (5)$$

Так как по определению $(\varepsilon_2)_{xx} = \eta_2^2 = (n_2 - ik_2)^2$, то, учитывая (2), (3), нетрудно видеть, что квадратичное по намагниченности слагаемое в (4) определяется МРЭ, вынужденной анизотропией и недиагональными членами. Вклады вынужденной анизотропии и недиагональных членов имеют величину порядка квадрата магнитооптического фактора Q , т. е. квадратичны по спин-орбитальному взаимодействию. Магнитооптический фактор Q в видимой области спектра не превышает 0.02 и нет оснований предполагать его усиление в ИК-области спектра¹⁾. Поэтому очевидно, что четный магнитооптический эффект может привести к изменению R при намагничивании не более чем на 0.1%. Выполненные численные расчеты для конкретных сплавов с экспериментально определенными оптическими и магнитооптическими параметрами [15] подтвердили эту оценку. Таким образом, во всех случаях, когда МРЭ превышает 0.1%, влияние на МРЭ четного магнитооптического эффекта можно не учитывать. Тогда можно положить в (3) $a = 0, b_a = 0$,

$$n_2 = n_2^0(1 + cM^2), \quad k_2 = k_2^0(1 + dM^2), \quad (6)$$

¹⁾ Недиагональные компоненты тензора диэлектрической проницаемости зависят от отношения коэффициента аномального эффекта Холла к квадрату сопротивления. В нанокompозитах вблизи порога перколяции аномальный эффект Холла достигает гигантских значений, на 4 порядка больше, чем в металлах, но при этом электросопротивление возрастает в еще большей степени.

где коэффициенты c и d определяются спин-зависимым рассеянием или туннелированием.

Если среда 1 есть вакуум ($n_1 = 1$) и падение света близко к нормальному ($\phi_0 = 0$), то выражение (4) значительно упрощается:

$$R = \frac{(1 - n_2)^2 + k_2^2}{(1 + n_2)^2 + k_2^2}, \quad (7)$$

и тогда

$$\frac{\Delta R}{R} = (1 - R)M^2 \times \left[c \frac{1 - (n_2^0)^2 + (k_2^0)^2}{(1 - n_2^0)^2 + (k_2^0)^2} - 2d \frac{(k_2^0)^2}{(1 - n_2^0)^2 + (k_2^0)^2} \right]. \quad (8)$$

2.2. Трехслойная система диэлектрик–магнитная пленка–подложка

В случае трехслойной системы, состоящей из магнитной пленки (среда 2) толщиной h на подложке (среда 3) и диэлектрика (среда 1), при падении света из среды 1 выражение для коэффициента отражения p -поляризованного излучения будет иметь вид

$$R = |r_{jkl}^p|^2, \quad r_{jkl}^p = \frac{r_{jk}^p + F_k^2 r_{kl}^p}{1 + F_k^2 r_{jk}^p r_{kl}^p}, \quad (9)$$

$$r_{jk}^p = \frac{g_j \eta_k^2 - g_k \eta_j^2}{g_j \eta_k^2 + g_k \eta_j^2}, \quad g_j = \sqrt{\eta_j^2 - n_1^2 \sin^2 \phi_0},$$

$$F_k = \exp(-2\pi i \lambda^{-1} g_k h_k), \quad (10)$$

где наличие множителя F_k , возникающего за счет прохождения света через пленку и отражения от подложки и содержащего комплексный показатель преломления магнитной среды, может приводить к значительному усилению МРЭ. Некоторые примеры результатов расчета по формулам (4) и (9), а также микроскопические выражения для параметров c, d даны ниже.

2.3. Особенности частотной зависимости магниторефрактивного эффекта для нанокompозитов

При низких частотах вероятность туннелирования не зависит от частоты. Однако при высоких частотах возможно как уменьшение туннельной прозрачности, когда период электромагнитной волны становится меньше характерного времени туннелирования, так и увеличение вероятности туннелирования за счет поглощения туннелирующим электроном кванта света. Кроме того, туннельный контакт представляет собой по сути конденсатор, поэтому

проводимость туннельного контакта на конечных частотах определяется резистивной и емкостной составляющими. Покажем, что первые два фактора не играют роли в формировании МРЭ, а последний существенно видоизменяет частотную зависимость по сравнению с зависимостью для металлических систем.

Наиболее простой оценкой для времени туннелирования τ является отношение ширины туннельного зазора, т. е. расстояния между гранулами s , к фермиевской скорости v_F . Тогда при характерных для туннелирования расстояниях $s = 1-3$ нм получаем, что время туннелирования составляет величину порядка 10^{-16} с, т. е. в ИК-области $\lambda = 1-10$ мкм, $\omega\tau \ll 1$ и вероятность туннелирования такая же, как в статическом случае [16]. Так как $\omega\tau \ll 1$ и вероятность туннелирования электронов на частоте $E_F + \hbar\omega$ зависит от множителя $[e^{\omega\tau} - 1]^2$ и мощности падающего излучения [16], в ИК-диапазоне спектра при плотности мощности излучения в пятне засветки заведомо меньшей 1 Вт/см^2 туннельное сопротивление ρ не зависит от частоты. Однако туннельный зазор можно рассматривать как параллельно включенное электрическое сопротивление и конденсатор с диэлектрической проницаемостью ε_{ins} . Тогда проводимость такой системы и гранулированной пленки в целом на конечных частотах можно представить в виде

$$\sigma(\omega, H) = \frac{1 + i\omega\varepsilon_{ins}\rho(H)/4\pi}{\rho(H)}, \quad (11)$$

что существенно отличается от частотной зависимости Друде–Лоренца для металлических систем. Отметим, что выражение (11) успешно использовалось в [17] для интерпретации экспериментальных данных по магнитоимпедансу туннельных систем. По определению

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_r - i \frac{4\pi\sigma(\omega)}{\omega} = \varepsilon' - i\varepsilon''. \quad (12)$$

Здесь $\varepsilon' = n^2 - k^2$, $\varepsilon'' = 2nk$ и для модели Друде $\varepsilon_r = 1$. Из (11), (12) следует, что для нанокompозита только мнимая часть диэлектрической проницаемости зависит от туннельного сопротивления. Полагая, что магнитоотражение,

$$\frac{\Delta\rho(H)}{\rho} = \frac{\rho(0) - \rho(H)}{\rho(0)}, \quad (13)$$

мало, и используя (8), (12), (13), получаем

$$(c + d)M^2 = \frac{\Delta\rho}{\rho}, \quad \frac{c}{d} = \left(\frac{k^0}{n^0}\right)^2, \quad (14)$$

что эквивалентно соотношениям

$$\begin{aligned} dM^2 &= \frac{\Delta\rho}{\rho} \frac{1}{1 + (k^0/n^0)^2}, \\ cM^2 &= \frac{\Delta\rho}{\rho} \frac{(k^0/n^0)^2}{1 + (k^0/n^0)^2}, \end{aligned} \quad (15)$$

в которых опущен индекс «2», указывающий на магнитную среду. Выражения (15) в сочетании с формулами для коэффициента отражения (4) или (10) полностью определяют МРЭ нанокompозитов для p -поляризованного света через магнитоотражение и оптические параметры. В частном случае нормального падения из (8), (15) следует, что

$$\frac{\Delta R}{R} = -(1-R) \frac{\Delta\rho}{\rho} k^2 \left[\frac{3n^2 - k^2 - 1}{(n^2 + k^2)[(1-n)^2 + k^2]} \right]. \quad (16)$$

Это выражение представляет основной результат данного раздела. Из (16) видно, что МРЭ в нанокompозитах с туннельным магнитоотражением сложным образом связан с оптическими параметрами. В частности, МРЭ должен быть выражен наиболее ярко в областях спектра, где имеется слабое отражение и возможен как отрицательный, так и положительный МРЭ, что позволяет объяснить экспериментальные данные работы [9].

3. ОБРАЗЦЫ

Объектами исследования были выбраны пленки нанокompозитов, обладающие значительным туннельным магнитоотражением.

Пленки аморфного ферромагнитного сплава $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}$ в аморфной матрице двуокиси кремния $\alpha\text{-SiO}_2$ были получены методом ионно-лучевого распыления составных мишеней. Многокомпонентная мишень представляла собой литую основу из соответствующего ферромагнитного сплава размером $270 \times 80 \text{ мм}^2$, на поверхности которой перпендикулярно продольной оси размещались пластины диэлектрического материала — кварца шириной 9 мм. Напыление осуществлялось в вакууме $1 \cdot 10^{-5}$ Торр на неподвижные охлаждаемые водой ситалловые подложки. При одновременном распылении металлического сплава и диэлектрика из составной мишени с переменным расстоянием между пластинами кварца в едином технологическом цикле формировалась гранулированная структура с широким и непрерывным набором концентраций металлической фазы. Значения концентраций x металлической фазы находились в интервале от 30 до 65 ат.%. Середине этого интервала, так называемому порогу протекания, соответствуют образцы со структурами, в которых наблюдаются

наибольшие значения магнитосопротивления. Толщина пленок из области перколяционного предела составляла примерно 4 мкм. По данным электронно-микроскопических исследований, проведенных с помощью электронного просвечивающего микроскопа высокого разрешения, синтезированные композиты состояли из аморфных гранул металла размером от 2 до 5 нм, распределенных в аморфной матрице. Меньший размер гранул соответствует меньшим концентрациям металлической фазы, больший размер характерен для образцов с концентрацией x выше 60 ат.%. Полученные в процессе роста гранулы не абсолютно изолированы в диэлектрической матрице (даже в случае высокой концентрации SiO_2), а образуют небольшие конгломераты и цепочки, которые, в свою очередь, формируют лабиринтную структуру.

Использование для изучения МРЭ пленок CoFeZr-SiO_n позволяет минимизировать влияние на МРЭ четного магнитооптического эффекта, так как для аморфных металлов явление вынужденной анизотропии заведомо незначительно (см. обсуждение после формулы (5) разд. 1). Кроме того, полученный широкий диапазон составов позволяет исследовать МРЭ в области металлической и диэлектрической фаз, а также вблизи порога перколяции.

Гранулированные пленки ферромагнитный металл-диэлектрик $\text{Co}_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ с высоким магнитосопротивлением, достигающим 8% в поле 12 кЭ при комнатной температуре, были приготовлены методом тандемного радиочастотного магнетронного распыления из различных мишеней сплавов $\text{Co}_x\text{Al}_{1-x}$ в атмосфере аргона и кислорода на охлаждаемые стеклянные подложки. Толщина пленок составляла 2 мкм, размеры гранул Co были в пределах 2–5 нм. Детальное описание процедуры приготовления образцов, методы и результаты измерений их химических, структурных, электрических и магнитных параметров даны в [18, 19]. Принципиально по такой же технологии [20] были синтезированы наногранулированные образцы системы $(\text{FeCo})-(\text{MgF})$, магнитосопротивление которых достигало 13.3% при комнатной температуре в магнитном поле 10 кЭ.

Пленки системы Fe-SiO_n были изготовлены методом двойного ионно-лучевого распыления на кремниевые подложки Fe и SiO_2 из составной мишени, позволяющей менять соотношение ферромагнетика и диэлектрика. Характерный размер гранул составлял примерно 4 нм, толщина пленок 0.2–0.8 мкм. Максимальное значение магнитосо-

противления в зависимости от состава пленок достигало значения 1–3% в поле 10 кЭ при комнатной температуре. Структурные, электрические и магниторезистивные свойства пленок этой системы описаны в [21].

4. МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ДЕТАЛИ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Оптическое отражение и магнитооптические эффекты магнитных нанокompозитов изучались в широком диапазоне длин волн от 1.43 до 20 мкм ($7000\text{--}500\text{ см}^{-1}$). В интервале частот $500\text{--}7000\text{ см}^{-1}$ использован серийный фурье-спектрометр FTIR PU9800 со спектральным разрешением примерно 4 см^{-1} и фотометрической точностью по пропусканию $\Delta T = 0.1\text{--}0.01\%$. Ниже оптическое отражение представлено частотной зависимостью энергетического коэффициента отражения $R(\omega)$; магнитооптические эффекты — относительным изменением интенсивности излучения, отраженного ферромагнетиком при его намагничивании. В используемой нами геометрии наблюдения магнитооптического эффекта на p -волне линейно-поляризованного света ($\mathbf{E} \perp \mathbf{M}$) одновременно могут проявляться три интенсивностных эффекта: линейный по намагниченности \mathbf{M} экваториальный эффект Керра и два квадратичных по \mathbf{M} — ориентационный и МРЭ.

Магниторефрактивный эффект измерялся по методике и на установке, описанной в [8], в которую мы внесли ряд конструктивных изменений, касающихся, в основном, магнитооптической приставки фурье-спектрометра.

Во-первых, с помощью плоских и асферических внеосевых зеркал излучение ИК-спектрометра было развернуто на 90° , что позволило направить его под углом $\varphi \approx 10^\circ$ к нормали образца, размещенного в зазоре магнита. Измерения МРЭ при угле падения света, близком к нормальному, позволяют избежать влияния экваториального эффекта Керра (при нормальном падении этот эффект равен нулю), и эта геометрия наиболее удобна для интерпретации эксперимента. Во-вторых, поворачивающийся постоянный магнит был заменен электромагнитом, с помощью которого при питании его как постоянным, так и переменным электрическим током в зазоре $7 \times 10\text{ мм}^2$ создавалось либо постоянное магнитное поле $H_{max} = 1700\text{ Э}$, либо переменное, амплитудное значение которого также достигало 1700 Э. Уменьшая переменное поле до нуля, можно было практи-

чески полностью размагничивать образец (т.е. достичь состояния с $M_r = 0$).

Нами разработана также новая методика измерения разности интенсивностей излучения, отраженного образцом в размагниченном $I(0)$ и намагниченном $I(H)$ состояниях, а не отношения этих интенсивностей, как было раньше [8]. Эта операция позволила уменьшить «вклад» шумов, что оказывается особенно важным при малых значениях измеряемых эффектов. Деление полученной разности ΔI на интенсивность света, измеренную при $H = 0$, определяет величину МРЭ, которая дается формулой

$$\xi(\omega) = \frac{I(0) - I(H)}{I(0)} = \frac{R(0) - R(H)}{R(0)}, \quad (17)$$

в которой интенсивности света заменены пропорциональными им энергетическими коэффициентами отражения.

В результате проведенных изменений и усовершенствований стало возможно измерять оптическое отражение и МРЭ не только при наклоне падения света, но и при угле близком к нормальному, а также на полностью размагниченных образцах, а не в состоянии остаточного намагничивания, как было раньше. Несмотря на усложнение оптического тракта установки, уровень шумов не стал выше, чем в [8]. В результате применения операций накопления (по 1000 сканам), взаимно обратимых циклов и сглаживания уровень шумов был понижен до $1 \cdot 10^{-4}$ в области частот 500–1000 см^{-1} и до $3 \cdot 10^{-4}$ при 2000 см^{-1} . Измерения оптического отражения и МРЭ проведены при углах падения $\varphi = 10^\circ, 50^\circ$ в диапазоне частот 500–5000 см^{-1} со спектральным разрешением 2 см^{-1} при комнатной температуре.

Магнитосопротивление измерялось двухточечным потенциометрическим методом при комнатной температуре в магнитном поле напряженностью до 12 кЭ, ориентированном параллельно поверхности образца, и определялось, как это принято, в соответствии с формулой (13).

5. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Исследования частотной зависимости оптического отражения нанокompозитов системы $(\text{CoFeZr})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ показали (рис. 1), что для всех концентраций в интервале частот 500–7000 см^{-1} коэффициент отражения $R(\nu)$ в 2–3 раза ниже, чем для чистых металлов, входящих в состав гранул, и практически не зависит от частоты в диапазоне

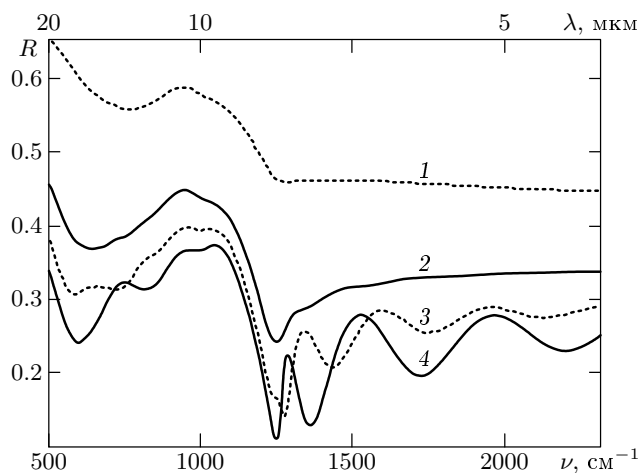


Рис. 1. Частотная зависимость коэффициентов отражения гранулированных пленок $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_{1.7})_{100-x}$: $x = 57$ (1), 47 (2), 40 (3), 34 (4); $\varphi = 10^\circ$

2500–7000 см^{-1} . При частотах ниже 2500 см^{-1} отмечается незначительное уменьшение $R(\nu)$ для образцов с концентрациями менее 47 ат.%. В интервале частот 1100–1400 см^{-1} наблюдается резкое уменьшение $R(\nu)$ с последующим возрастанием коэффициента отражения, связанного с поглощением в матрице окиси кремния. Минимальные значения $R(\nu)$ приходятся на образцы из диапазона концентраций 34–47 ат.%, соответствующего окрестности порога перколяции. Осцилляционное поведение $R(\nu)$ для образцов указанного диапазона концентраций в интервале частот 1100–1400 см^{-1} связано с интерференцией света, отраженного на границах пленка–воздух и пленка–подложка. При этом наибольшие изменения $R(\nu)$ приходятся на узкий интервал $1300 \pm 100 \text{ см}^{-1}$, в котором коэффициент отражения изменяется более чем в два раза. На рис. 1 спектры отражения ИК-излучения приведены для угла падения $\varphi = 10^\circ$. При $\varphi = 50^\circ$ наблюдаются смещения отдельных полос поглощения на 20–40 см^{-1} в сторону больших частот.

На рис. 2, 3 приведены результаты измерений магнитосопротивления и МРЭ системы $(\text{CoFeZr})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$. Данные для магнитосопротивления и МРЭ приведены для одного и того же значения поля 1700 Э.

Порог перколяции для этой системы аморфных гранулированных сплавов, определенный по результатам измерения сопротивления, составляет $x \approx 43$ ат. % и вблизи этого порога магнитосопротивление максимально и достигает 3.5%. Для об-

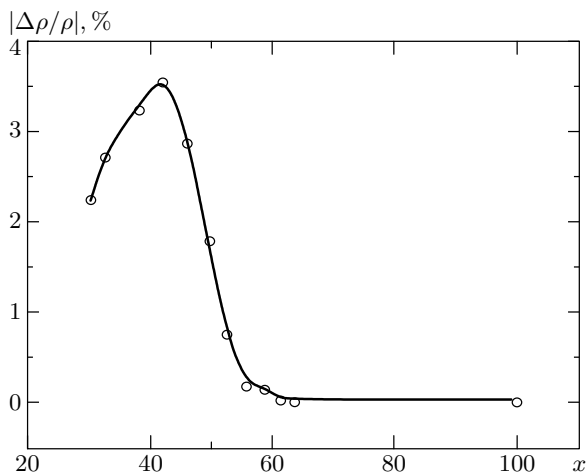


Рис. 2. Концентрационная зависимость магнитосопротивления гранулированного композита $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_{1.7})_{100-x}$

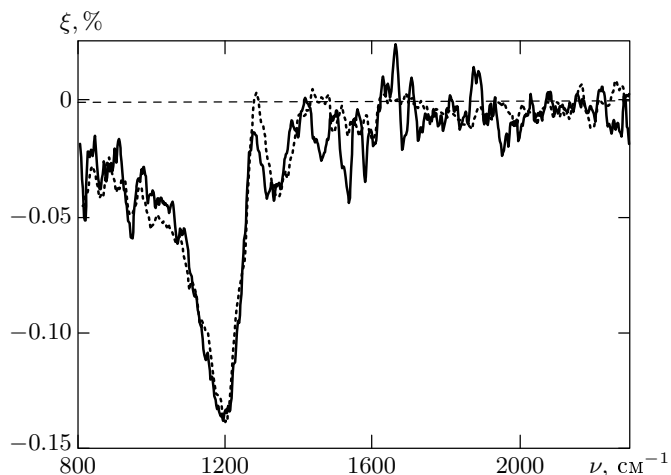


Рис. 4. Частотная зависимость МРЭ для естественного (пунктир) и *p*-поляризованного света (сплошная линия) для гранулированной пленки $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{47}(\text{SiO}_{1.7})_{53}$; магнитное поле 1700 Э; $\varphi = 10^\circ$

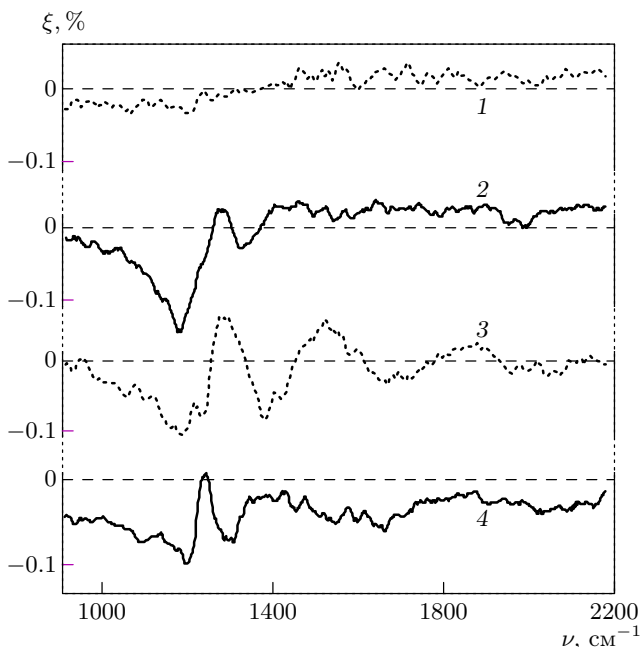


Рис. 3. Частотная зависимость магниторефрактивного эффекта гранулированных композитов $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_{1.7})_{100-x}$: $x = 57$ (1), 47 (2), 40 (3), 34 (4); магнитное поле 1700 Э; $\varphi = 10^\circ$

разцов с большим содержанием металлической фазы ($x = 57$ ат.%) магнитосопротивление практически отсутствует ($\Delta\rho/\rho \approx 0.2\%$), что в соответствии с развитой в разд. 1 теорией коррелирует с незначительным МРЭ. Интересно сравнить МРЭ для образцов с одинаковым магнитосопротивлением, но с

концентрациями x , меньшими и большими 43 ат.%, т. е. слева и справа от порога перколяции. На рис. 3 видно, что для образцов в диэлектрической фазе МРЭ больше, чем в металлической ($x > 47$ ат.%) при практически равных значениях магнитосопротивления (рис. 2). В соответствии с выражением (16) это объясняется меньшими значениями коэффициента отражения для «диэлектрического» образца (рис. 1). Наконец, имеется точное соответствие частоты, при которой наблюдается максимальное значение МРЭ, с частотой (1200 см^{-1}), при которой минимален коэффициент отражения.

Так как МРЭ в этой системе сплавов мал (в среднем меньше 0.1%), необходимо было доказать, что измеренные зависимости связаны именно с МРЭ. На рис. 4 показаны частотные зависимости МРЭ для одного из образцов для естественного света и *p*-волны линейно-поляризованного света. Видно, что в области спектра, где сигнал превышает 0.05%, практически нет зависимости от поляризации излучения, что является прямым доказательством того, что измеряемый сигнал и есть МРЭ. Однако это не так в диапазоне частот 2500–1300 и 1000–800 см^{-1} , где сигнал меньше 0.05% и влияние четного ориентационного эффекта уже заметно.

Корреляция между магнитосопротивлением и МРЭ уверенно наблюдается для всех нанокompозитов. Так, для композитов Fe-SiO_n магнитосопротивление в поле 2.2 кЭ не превышает 1.2% и соответственно величина МРЭ, как видно на частотной за-

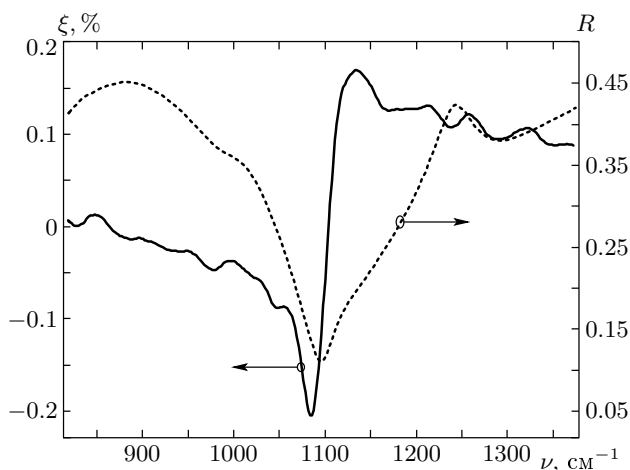


Рис. 5. Частотные зависимости коэффициента отражения (пунктир) пленки Fe-SiO₂ на подложке Si и магнитооптического эффекта (сплошная линия) для значения магнитного поля $H = 2200$ Э

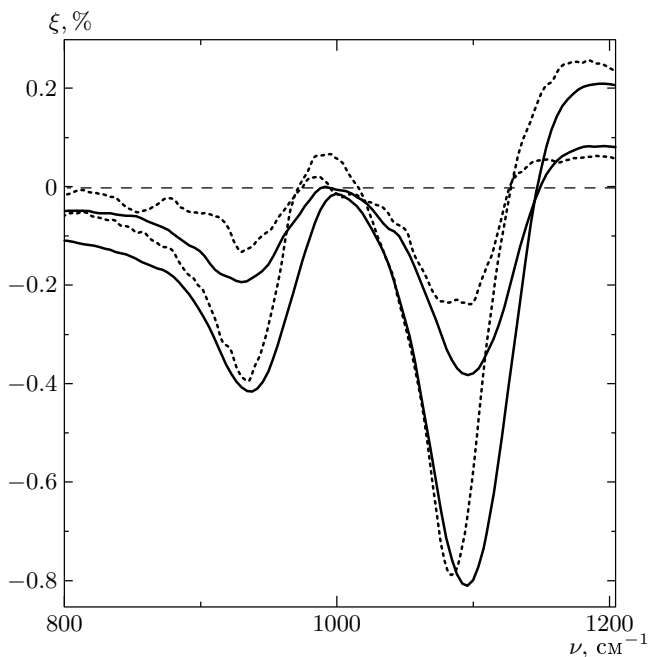


Рис. 6. Частотные зависимости магнитооптического эффекта пленки Co₄₃Al₂₂O₃₅ для двух значений поля $\Delta H = 2200$ Э, 100 Э: сплошные линии — для угла падения $\varphi = 45^\circ$; пунктирные — $\varphi = 10^\circ$

в зависимости этого эффекта (рис. 5), достигает 0.2 %.

Вблизи порога перколяции наноконпозиты становятся относительно прозрачными (рис. 1), поэтому даже для сравнительно толстых пленок нельзя полностью пренебрегать интерференцией света, связан-

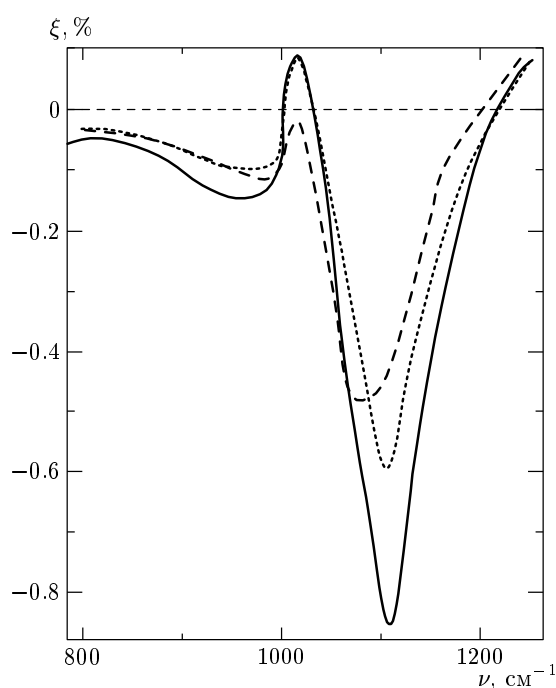


Рис. 7. Теоретические зависимости магнитооптического эффекта пленки Co₄₃Al₂₂O₃₅: сплошная линия — $\Delta\rho/\rho = 3\%$, пунктир — $\Delta\rho/\rho = 1\%$ (для $\varphi = 45^\circ$); штриховая линия — $\Delta\rho/\rho = 1\%$, $\varphi = 10^\circ$

ной с отражением от подложки. В частности, интерференционные биения коэффициента отражения хорошо видны на рис. 1 для пленок с $x = 40, 34$ ат. %. Количественное описание этого эффекта должно базироваться на теории для модели трехслойной системы, приведенной в разд. 1. На рис. 6 представлены спектры частотной зависимости МРЭ образца Co₄₃Al₂₂O₃₅, которые получены при угле падения света 10° и в которых влияние интерференции наиболее выражено. Соответствующие этим спектрам теоретические зависимости $\xi(\nu)$ приведены на рис. 7.

На рис. 8 представлены экспериментальные данные по дисперсии при угле падения излучения $\varphi = 10^\circ$: МРЭ (для двух значений магнитного поля — 1500 Э и 1700 Э) и коэффициента отражения наноконпозитной пленки (Co_{0.4}Fe_{0.6})₄₈(Mg₅₂F), обладающей туннельным характером проводимости и большим магнитосопротивлением (7.5 % в поле 1700 Э). На рисунке видно, что МРЭ достигает значения 1.5 %, рекордного для всех исследованных металлических и неметаллических систем, на два порядка превышающего традиционные магнитооптические эффекты. Такая величина МРЭ в соответствии с выражением (16) связана с малым отраже-

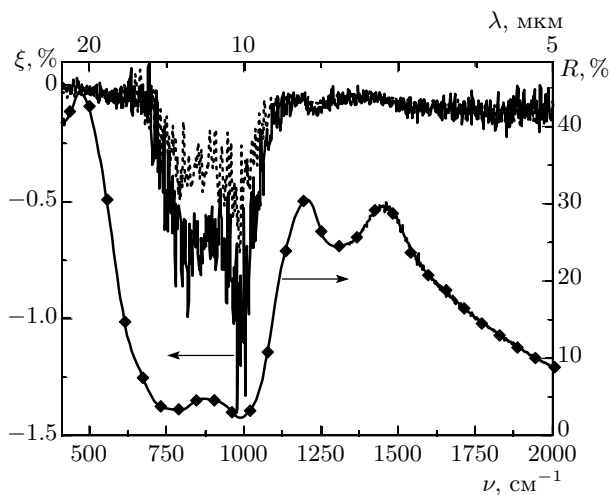


Рис. 8. Спектры магниторефрактивного эффекта ξ в поле $H = 1700$ Э (сплошная кривая) с разрешением 2 см^{-1} , $H = 1500$ Э (пунктирная кривая) с разрешением 4 см^{-1} и коэффициента отражения $R_{H=0}$ для пленки $(\text{Co}_{0.4}\text{Fe}_{0.6})_{48}(\text{Mg}_{52}\text{F})$ при усреднении по 300 сканам; $\varphi = 10^\circ$

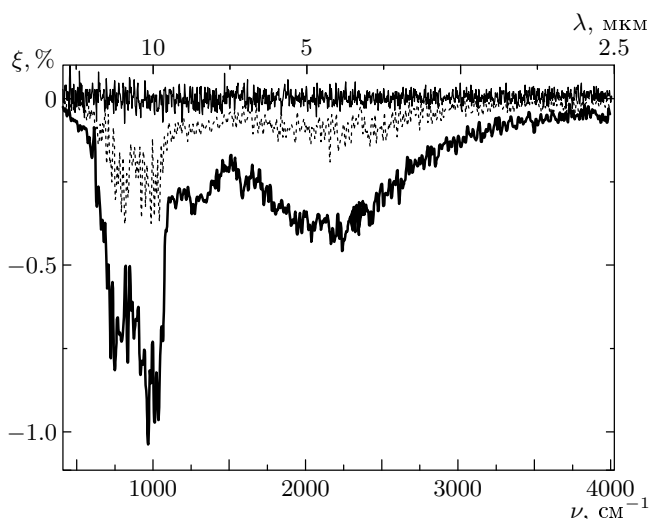


Рис. 9. Спектры магниторефрактивного эффекта ξ в поле $H = 1700$ Э (сплошная кривая), $H = 1500$ Э (пунктирная кривая) и шума с разрешением 4 см^{-1} для пленки $(\text{Co}_{0.4}\text{Fe}_{0.6})_{48}(\text{Mg}_{52}\text{F})$ при усреднении по 300 сканам; $\varphi = 45^\circ$

нием и большим магнитосопротивлением. Подчеркнем, что выражение (16) не исключает и достижения более высоких значений (порядка 10 %). На рис. 9 представлены спектры частотных зависимостей МРЭ для этого же образца в более широком интервале частот при $\varphi = 45^\circ$ для трех значений на-

магничивающего поля $H = 0, 1400, 1700$ Э. Спектр для $H = 0$ показывает, из какого уровня шумов выделен отклик исследуемого образца на воздействие магнитного поля. По величинам МРЭ для указанных значений поля можно заключить о нелинейной зависимости $\xi(H)$.

Следует обратить внимание на два факта, которые не описываются теорией разд. 1. Во-первых, значения коэффициента отражения при $\lambda = 20, 5$ мкм, как видно на рис. 8, различаются в 4 раза, а МРЭ при этих длинах волн практически одинаков. Во-вторых, наличие двух узких и четких пиков МРЭ в окрестности $\lambda = 10$ мкм также не коррелирует с поведением коэффициента отражения. Наконец, мы также не можем найти объяснения значительному «шуму» МРЭ в полях 1.5 и 1.7 кЭ в области 15–10 мкм. Возможно, эти особенности связаны с дополнительным влиянием магнитного поля на элементарные возбуждения в диэлектрической матрице MgF. Также нельзя исключить, что развитая простая теория высокочастотного туннелирования не учитывает всех факторов, таких, например, как влияние электрон-электронного взаимодействия [20].

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные исследования доказывают существование в магнитных нанокompозитах вблизи порога перколяции нового магнитооптического эффекта — МРЭ, связанного со спин-зависимым туннелированием. Имеется четкая корреляция между МРЭ и туннельным магнитосопротивлением. В зависимости от величины магнитосопротивления и оптических свойств нанокompозита МРЭ изменяется в широких пределах от 0.1 до 1.5 %, что на один-два порядка превышает четный магнитооптический эффект. Развитая теория позволяет дать качественное или полуквантовое объяснение целому ряду экспериментальных данных и позволяет надеяться на достижение еще больших значений МРЭ. Представляет несомненный интерес дальнейшее исследование угловых, поляризационных и температурных зависимостей МРЭ, поиск механизмов, ответственных за особенности МРЭ в системах металл-диэлектрик, продвижение в дальнюю ИК-область спектра, а также в видимую часть спектра, для которой следует ожидать новых эффектов, связанных с зависимостью туннельной прозрачности от частоты света.

Работа выполнена при финансовой поддержке

РФФИ (грант № 00-02-17797), Министерства образования, науки, спорта и культуры Японии (грант № 14-205045), а также в рамках программы «Университеты России» (гранты № № 01.03.003, 01.03.006).

Авторы выражают глубокую благодарность С. Охуме (S. Ohnuma), Б. Аронзону и М. Седовой предоставившим ряд образцов Co–Al–O, Fe–SiO₂ и CoFe–MgF, а также А. Ведяеву и Е. Шалыгиной за полезные дискуссии.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. C. Jacquet and T. Valet, in *Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces*, MRS Symposium Proceedings **384**, 477 (1995).
2. А. Б. Грановский, М. В. Кузмичев, Ж. П. Клерк, ЖЭТФ **116**, 1762 (1999).
3. M. Gester, A. Schlapka, R. A. Pickford, S. M. Thompson, J. P. Camplin, J. K. Eve, and E. M. McCash, *J. Appl. Phys.* **85**, 5045 (1999).
4. Н. Ф. Кубраков, А. К. Звездин, К. А. Звездин, В. А. Котов, ЖЭТФ **114**, 1101 (1998).
5. G. M. Genkin, *Phys. Lett. A* **241**, 293 (1998).
6. S. Uran, M. Grimsditch, E. Fullerton, and S. D. Bader, *Phys. Rev. B* **57**, 2705 (1998).
7. V. G. Kravets, D. Boses, J. A. D. Matthew, S. M. Thompson, H. Menard, A. B. Horn, and A. F. Kravets, *Phys. Rev. B* **65**, 054415 (2002).
8. И. В. Быков, Е. А. Ганьшина, А. Б. Грановский, В. С. Гущин, ФТТ **42**, 487 (2000).
9. D. Boses, V. G. Kravets, J. A. D. Matthew, and S. M. Thompson, *J. Appl. Phys.* **91**, 8795 (2002).
10. А. В. Грановский, Е. А. Ганьшина, В. С. Гусчин, И. В. Быков, А. А. Козлов, М. Inoue, N. Kobayashi, S. Onuma, and T. Masumoto, in *Digests of INTERMAG-2003*, USA, Boston (2003).
11. Г. С. Кринчик, М. В. Четкин, ЖЭТФ **36**, 1924 (1959).
12. Г. С. Кринчик, В. С. Гущин, Письма в ЖЭТФ **10**, 1969 (1969).
13. Г. А. Болотин, ФММ **39**, 731 (1975).
14. В. М. Маевский, ФММ **59**, 213 (1985).
15. А. Б. Грановский, А. Н. Юрасов, ФММ, в печати (2003).
16. M. Buttiker and R. Landauer, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1739 (1982).
17. H. Kaiju, S. Fujita, T. Morozumi, and K. Shiiki, *J. Appl. Phys.* **91**, 7430 (2002).
18. S. Matani, H. Fujimori, and S. Ohnuma, *J. Magn. Magn. Mat.* **165**, 141 (1997).
19. S. Ohnuma, K. Hono, E. Abe, H. Onodera, S. Matani, and H. Fujimori, *J. Appl. Phys.* **82**, 5646 (1997).
20. N. Kobayashi, S. Ohnuma, T. Masumoto, and H. Fujimori, *J. Appl. Phys.* **90**, 4159 (2001).
21. Б. А. Аронзон, А. Е. Варфоломеев, А. А. Ликальтер, В. В. Рыльков, М. В. Седова, ФТТ **41**, 944 (1999).
22. S. T. Chui and L. Hu, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 273 (2002).