

Магниторефрактивный эффект в гранулированных пленках с туннельным магнитосопротивлением

© И.В. Быков, Е.А. Ганьшина*, А.Б. Грановский*, В.С. Гуцин*

Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского Российской академии наук,
117975 Москва, Россия

* Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

E-mail: guschin@genphys.phys.msu.su

(Поступила в Редакцию 13 мая 1999 г.
В окончательной редакции 13 июля 1999 г.)

В гранулированных магнитных пленках металл–диэлектрик Co–Al–O с туннельным магнитосопротивлением в инфракрасной области спектра обнаружен магниторефрактивный эффект, состоящий в изменении их отражательной способности при намагничивании. Показано, что этот эффект наиболее ярко выражен в условиях интерференции, является четным по намагниченности, достигает величины 0.8% в области частот 1100 cm^{-1} , превосходя на порядок и линейный экваториальный эффект Кюри, и четный ориентационный магнитооптический эффект.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 97-02-17960).

Оптические явления в металлах в ИК области спектра связаны с внутризонными оптическими переходами и являются частотными аналогами электросопротивления. Поэтому в системах, обладающих значительным магнитосопротивлением, будь то гигантское магнитосопротивление (ГМС) в магнитных металлических мультислоях или гранулированных пленках либо туннельное магнитосопротивление в сэндвичах с диэлектрической прослойкой или гранулированных пленках металл–диэлектрик вблизи порога перколяции, магнитное поле должно оказать влияние на отражение, пропускание и поглощение ИК излучения. Эффект влияния магнитного поля на показатели преломления и поглощения — магниторефрактивный эффект — впервые был теоретически рассмотрен для металлических мультислоев в экспериментально подтвержден в случае прохождения излучения в работе [1]. В дальнейшем магниторефрактивный эффект был теоретически исследован в работах [2–4] для металлических мультислоев и в работе [5] в случае гранулированных пленок. Однако до настоящего времени влияние магнитного поля на коэффициент отражения обнаружено не было ни для мультислоев, ни для гранулированных структур, а выводы работ [1–5] о величине достаточно противоречивы.

Магнитооптические (МО) свойства в ИК области спектра также определяются внутризонными процессами и являются частотными аналогами аномального эффекта Холла (АЭХ). Поэтому для гранулированных пленок металл–диэлектрик, характеризующихся при малом размере гранул гигантским АЭХ [6–8], следует ожидать и усиления линейных магнитооптических эффектов. Именно с этими двумя обстоятельствами и связаны принятые нами исследования особенностей оптических и магнитооптических свойств в ИК области спектра гранулированных пленок Co–Al–O с туннельным магнитосопротивлением.

1. Методика эксперимента и образцы

Используемый в работе МО метод исследования состоит в измерении изменений интенсивности p -волны линейно поляризованного света ($\mathbf{E} \perp \mathbf{I}$), отраженного ферромагнетиком при его намагничивании. В этой геометрии эксперимента одновременно проявляются два интенсивностных эффекта: линейный по намагниченности экваториальный эффект Керра (ЭЭК) и квадратичный по намагниченности ориентационный магнитооптический эффект (ОМЭ). В статической и динамической методиках измерений ЭЭК при перемагничивании образца происходит изменение интенсивности отраженного света ΔR , и ЭЭК определяется как относительное изменение $\delta = \Delta R/R$, где R — интенсивность отраженного света. Однако при изменении магнитного поля от $-H$ до $+H$ (намагниченность при этом меняется от $-I_s$ до $+I_s$, где I_s — намагниченность насыщения) невозможно обнаружить существование четных магнитооптических эффектов. Четные эффекты можно выделить при однополярном намагничивании образца, измеряя изменение интенсивности отраженного света δ_a при изменении намагниченности от I_r до I_s (I_r — остаточная намагниченность; H изменяется от 0 до H_s) и δ_b при изменении намагниченности от $-I_s$ до $-I_r$ (H изменяется от $-H_s$ до 0). Полусумма $\delta_1 = (\delta_a + \delta_b)/2$ есть ЭЭК, а полуразность $\delta_2 = (\delta_a - \delta_b)/2$ представляет собой четный ориентационный магнитооптический эффект.

Спектральные исследования МО активности ферромагнетиков различных типов проведены в настоящее время в области частот от УФ до близкого ИК диапазона. Продвижение в ИК диапазон представляет большие трудности по ряду причин: уменьшение интенсивности излучения обычных источников, уменьшение чувствительности приемников излучения, сильное поглощение излучения объектами исследования и т.д. Обращение

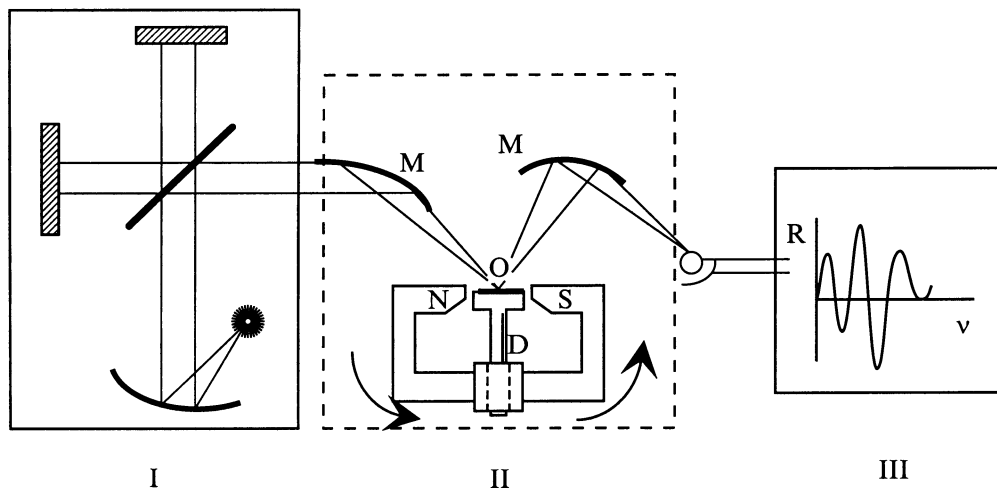


Рис. 1. Блок-схема магнитооптической установки. I — интерферометр ИК–Фурье спектрометр; II — магнитооптическая приставка; NS — магнит, M — зеркала, O — образец, D — держатель образца и поворотное устройство; III — узел регистрирующих приборов.

к современной спектроскопии ИК диапазона, а именно Фурье-спектроскопии, связано с возможностями новой техники при решении стоящих задач. При этом приходится отказываться от более чувствительного (примерно на 2 порядка) динамического метода МО измерений и вести измерения в статических магнитных полях. Поэтому нами проведен ряд конструктивных изменений в используемом серийном спектрометре FTIR PU9800, позволивших разместить в приставке диффузного отражения компактный модуль (магнитооптическая приставка), содержащий держатель образца, снабженный двухкоординатной микроскопической подачей для юстировки образца, магнит ($H_{\max} \cong 2700$ Oe), намагничивающий образец в его плоскости и поворотное устройство магнита (рис. 1). Внешние размеры П-образного магнитопровода, изготовленного из магнитной стали "Армко", составляли $15 \times 6 \times 20$ mm, сечение магнитопровода — 2×6 mm. Поле в зазоре магнита (1–6 mm) было усилено вставками из высококоэрцитивного сплава с остаточной намагниченностью $2 \cdot 10^4$ G, закрепленными на полюсах магнитопровода. Магнит мог свободно поворачиваться и перемещаться вверх-вниз относительно держателя образца. Оси конусов падающего и отраженного образцом излучения, сформированного асферическими внеосевыми зеркалами приставки отражения, симметричны относительно нормали к образцу и образуют с ней углы $\pm 50^\circ$. Апертура пучка излучения составляет примерно 20° . Линейно поляризованное излучение создавалось с помощью плоскопараллельной пластины кремния, размещаемой между источником излучения и интерферометром Майкельсона под углом Брюстера для середины рабочего диапазона длин волн, который составлял 74° . Степень поляризации во всем спектральном диапазоне с учетом деполяризации излучения на системе поворотных и фокусирующих зеркал была не ниже 90° . Потери мощности излучения из-за фильтрации круговой поляризации были компенсиро-

ваны заменой стандартного источника излучения более мощным с платиновой нитью накала. В результате применения операций накопления (по 400 сканам), взаимно обратимых циклов и сглаживания уровень шумов был понижен до $1 \cdot 10^{-4}$ в области частот 2500 cm^{-1} и до $3 \cdot 10^{-4}$ при 5000 cm^{-1} .

Гранулированные пленки металл–диэлектрик Co–Al–O были получены напылением сплавов $\text{Co}_{100-x}\text{Al}_x$ на неохлаждаемые стеклянные подложки в атмосфере аргона и кислорода. Методика приготовления образцов и результаты структурных и электрических исследований подробно описаны в [9,10]. Исследовались пленки составов $\text{Co}_{46}\text{Al}_{22}\text{O}_{32}$ (обозначен как 1) и $\text{Co}_{43}\text{Al}_{22}\text{O}_{35}$ (2), которые по составу близки к порогу перколяции и обладают гигантскими значениями магнитосопротивления. Толщина пленок составляла $\approx 2 \mu\text{m}$, размеры гранул Co были в пределах 30–50 Å.

2. Экспериментальные результаты и обсуждение

Нормированные по алюминию спектры частотной зависимости коэффициента отражения $R(\nu)$ для указанных образцов Co–Al–O приведены на рис. 2. В области $1800\text{--}6000 \text{ cm}^{-1}$ для образца 1 и $3500\text{--}6000 \text{ cm}^{-1}$ для образца 2 отражательная способность практически не зависит от частоты излучения; в области больших длин волн наблюдаются осцилляционные изменения коэффициента отражения, при этом наибольшие изменения $R(\nu)$ приходятся на область $1000 \pm 150 \text{ cm}^{-1}$, в которой коэффициент отражения изменяется более чем в 1.5 раза. В области частот ниже 1000 cm^{-1} осцилляции исчезают, что связано с резким возрастанием поглощения в матрице Al_2O_3 [11].

Влияние магнитного поля на отражательную способность гранулированных диэлектрических пленок

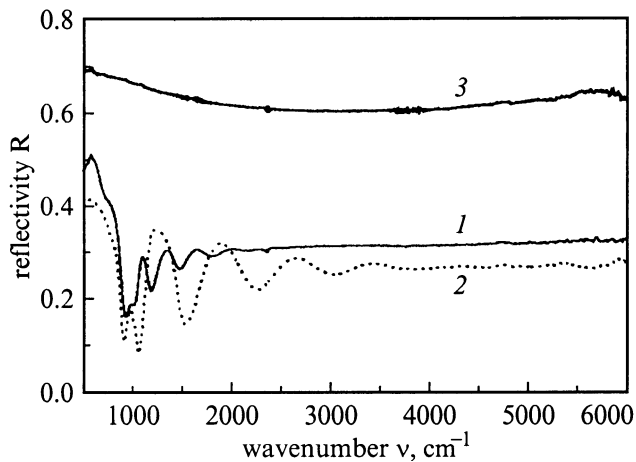


Рис. 2. Частотная зависимость коэффициентов отражения гранулированных пленок $\text{Co}_{46}\text{Al}_{22}\text{O}_{32}$ (1) и $\text{Co}_{43}\text{Al}_{22}\text{O}_{35}$ (2) и пленки чистого Co (3).

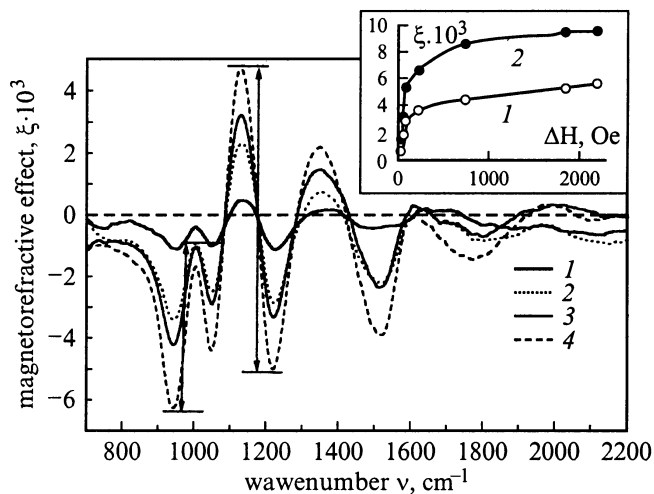


Рис. 3. Частотная зависимость магнито-рефрактивного эффекта пленки $\text{Co}_{46}\text{Al}_{22}\text{O}_{32}$ для ряда значений магнитного поля $\Delta H = H_{\max} - H_i$; $\Delta H, \text{Oe}$: 1 — 50, 2 — 100, 3 — 250, 4 — 2200. На вставке приведены полевые зависимости разности амплитудных значений магнито-рефрактивного эффекта в области частот 970 (1) и 1180 cm^{-1} (2).

Co–Al–O в ИК диапазоне демонстрируется на рис. 3, где для образца $\text{Co}_{46}\text{Al}_{22}\text{O}_{32}$ в области 500–2200 cm^{-1} представлены спектры частотной зависимости изменений коэффициента отражения p -волны линейно поляризованного света в магнитном поле $\Delta R = R(\nu, H) - R(\nu, H_{\max})$, нормированные на спектр значений коэффициента отражения $R(\nu, H_{\max})$ в максимальном магнитном поле, т.е. $\xi(\nu) = R(\nu, H) - R(\nu, H_{\max})/R(\nu, H_{\max})$. Магнитное поле, ориентированное в плоскости падения света, уменьшалось от $H_{\max} = 2700$ до 500 Oe. Таким образом, на рис. 2 представлены изополевые спектры частотной зависимости магнито-рефрактивного эффекта $\xi(\nu) = \Delta R/R(\nu, H_{\max})$. Величина эффекта изменений

отражательной способности ИК излучения под влиянием магнитного поля достигает значения $6 \cdot 10^{-3}$ при $\nu \approx 950 \text{ cm}^{-1}$ для данного образца и $\xi(\nu) \approx 8 \cdot 10^{-3}$ при $\nu \approx 1100 \text{ cm}^{-1}$ для образца $\text{Co}_{43}\text{Al}_{22}\text{O}_{35}$ (рис. 4). Увеличение напряженности магнитного поля приводит к увеличению магнито-рефрактивного эффекта и, как видно из вставки рис. 3, эффект имеет тенденцию к насыщению. Аналогичное поведение спектров $R(\nu, H)$ и $\xi(\nu)$ наблюдается на s -компоненте линейно поляризованного света.

Характер спектров $\xi(\nu)$ остается неизменным при изменении направления намагничивающего поля, о чем свидетельствует рис. 5. В области максимальных значений эффекта различие $\xi(\nu)$ для H_{\perp} , перпендикулярного плоскости падения света, и H_{\parallel} , лежащего в плоскости падения, составляют $5 \cdot 10^{-4}$. Это значение больше ошибки измерений. Для выяснения причины наблюдаемого различия были проведены прямые измерения экваториального эффекта Керра и ориентационного магнитооптического эффекта. ЭЭК измерялся путем перемагничивания образца, т.е. намагниченность насыщения изменялась от I_s до $-I_s$. Максимальные значения ЭЭК для образцов 1 и 2 в частотном диапазоне 500–5000 cm^{-1} не превосходили $1-2 \cdot 10^{-4}$, т.е. находились на уровне чувствительности установки. В то же время величина четного ОМЭ, измеряемая путем размагничивания образца от I_s до I_r и от $-I_s$ до $-I_r$, достигала значений $5 \cdot 10^{-4}$ в области частот 950, 1230 и 1500 cm^{-1} , что соответствует, как видно из рис. 5, разности величин $\xi(\nu, H_{\parallel}) - \xi(\nu, H_{\perp})$ для плоскостного и поперечного намагничивания образцов.

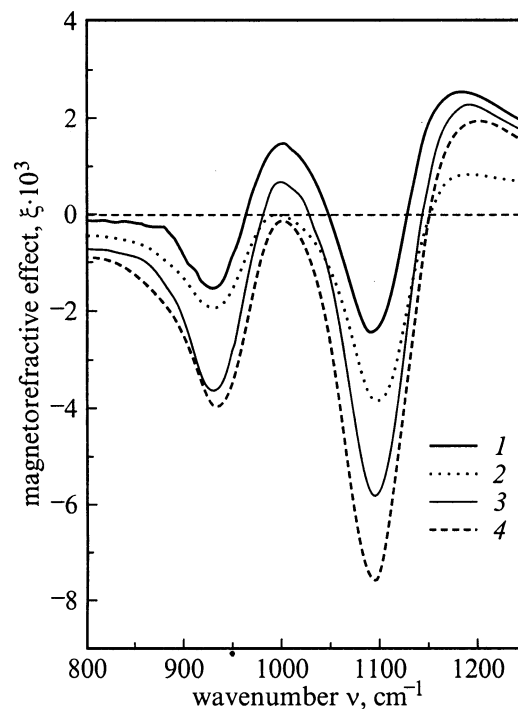


Рис. 4. Частотная зависимость магнито-рефрактивного эффекта пленки $\text{Co}_{43}\text{Al}_{22}\text{O}_{35}$; $\Delta H, \text{Oe}$: 1 — 50, 2 — 100, 3 — 250, 4 — 2200.

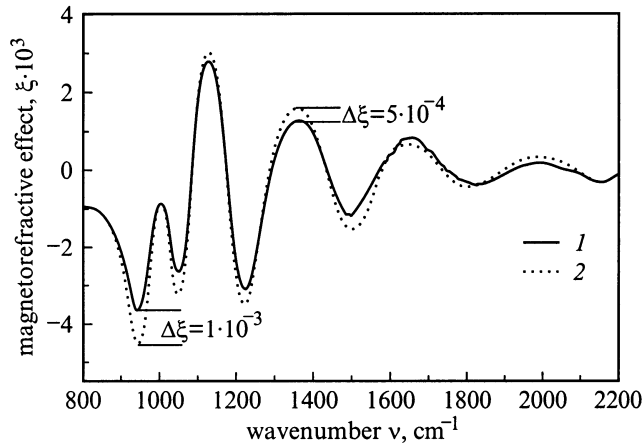


Рис. 5. Частотная зависимость магнито-рефрактивного эффекта пленки $\text{Co}_{43}\text{Al}_{22}\text{O}_{35}$ для случаев экваториального и меридионального намагничивания: 1 — вектор H параллелен плоскости падения света, 2 — H перпендикулярен плоскости падения; $\Delta H = 2000$ Ое.

Таким образом, можно констатировать, что в ИК диапазоне спектра ($\lambda = 4\text{--}12 \mu\text{m}$) имеют место осцилляции коэффициента отражения гранулированных магнитных пленок $\text{Co}_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ с гигантским магнитосопротивлением, причем амплитуда осцилляций возрастает с увеличением напряженности магнитного поля. Этот эффект — магнито-рефрактивный эффект — является четным по намагниченности; его величина не зависит от направления магнитного поля, намагничивающего образец в его плоскости. Величина магнито-рефрактивного эффекта достигает 0.8% в области частот $1100 \pm 100 \text{ cm}^{-1}$ для образца $\text{Co}_{42}\text{Al}_{22}\text{O}_{35}$, и превосходит более чем на порядок как линейный ЭЭК, так и одновременно наблюдаемый в ферромагнетиках четный ОМЭ.

Из возможных механизмов наблюдаемых осцилляций $R(\nu)$ следует заведомо исключить возбуждение поверхностных плазменных волн, магнито-статических волн, дополнительных фоновых мод или примесных центров, так как все эти механизмы несвойственны для рассматриваемой области ИК спектра. Хорошо известно, что в ИК области спектра поглощение света в металле происходит за счет внутрizonных переходов и поэтому наблюдаемые особенности естественно было бы связать с особенностями электронной структуры кластеров Co исследованных пленок металл-диэлектрик. Действительно, плотность электронных состояний кластеров малого размера имеет пиковую структуру [12] с энергетическим расстоянием между пиками сравнимым с наблюдаемыми в эксперименте положениями амплитуд осцилляций. Однако этот механизм также мало вероятен, так как, во-первых, неизбежен разброс в размерах кластеров гранулированной пленки, подавляющий пиковую структуру плотности электронных состояний, а во-вторых, намагничивание образца должно было бы привести к смещению пиков, тогда как в эксперименте положение максимумов и

минимумов в спектральной зависимости $R(\nu)$ и $\xi(\nu)$ не изменяется при приложении поля. Поэтому мы считаем, что наблюдаемые осцилляции связаны с интерференцией волн, отраженных от верхней поверхности пленки и границы раздела пленка-подложка. Вблизи порога перколяции гранулированная пленка металл-диэлектрик становится мало поглощающей в ИК области спектра по сравнению с "хорошими" металлами, так как ее сопротивление на несколько порядков больше. Как следствие этого коэффициент отражения такой пленки намного меньше, чем у сплошной пленки Co (рис. 2). Поскольку коэффициент поглощения χ зависит от проводимости вещества, а в материалах с ГМС проводимость зависит от магнитного поля, то очевидно, что результирующая амплитуда интерферирующих волн будет также зависеть от магнитного поля. На этом основании можно сказать, что наблюдаемые осцилляции $R(\nu)$ являются следствием интерференции, а их усиление в магнитном поле есть магнито-рефрактивный эффект, усиленный за счет интерференции. Такая гипотеза позволяет непротиворечиво объяснить полученные экспериментальные данные.

В данной работе мы дадим только качественную картину. В рамках механизма интерференции положение максимумов и минимумов определяется следующими простыми соотношениями:

$$(\lambda_{\min})_m = \frac{2d\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}{m}; \quad (\lambda_{\max})_m = \frac{4d\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}{2m + 1},$$

где θ — угол падения, n — показатель преломления пленки, m — номер интерференционного максимума. Эти формулы позволяют объяснить неперриодическое положение осцилляций, а также то, что они наблюдаются для рассматриваемой ситуации ($\theta = 45^\circ$, $d = 2 \mu\text{m}$) в области $4\text{--}12 \mu\text{m}$. Интенсивность интерферирующих линейно поляризованных волн в максимумах и минимумах определяется очевидным соотношением

$$I_{\pm} = I_1 + I_2 \pm 2\sqrt{I_1 I_2}; \quad I_2 = \beta I_1 e^{-2\chi d} \sqrt{1 - \frac{\sin^2 \theta}{n^2}},$$

где β — коэффициент отражения от границы пленка-подложка. Поскольку по определению $\chi = \frac{4\pi}{\lambda} k$, $n + ik = (\varepsilon + \frac{4\pi i \sigma}{\omega})^{1/2}$, то приближенно можно считать, что $\chi \sim k \sim \sigma$, тогда изменение результирующей интенсивности при приложении поля равно

$$\frac{\Delta I_{\pm}(H)}{I_{\pm}} = \frac{I_{\pm}(H) - I_{\pm}(0)}{I_{\pm}(0)} \approx 2d\chi \frac{\Delta \sigma(H)}{\sigma} \left[\beta e^{-2\chi d} + \sqrt{\beta e^{-2\chi d}} \right],$$

что по порядку величины соответствует эксперименту

$$\frac{\Delta \sigma(H)}{\sigma} \sim 8\%; \quad 2\chi d \sim 1; \quad \beta \sim 0.5; \quad \frac{\Delta I_{\pm}}{I_{\pm}} \sim 1\%.$$

В ближней ИК области спектра, где не соблюдаются условия интерференции, изменения коэффициента отражения $R(H)$ составляют величину, меньшую 0.1%, что полностью соответствует расчету магниторефрактивного эффекта в гранулированных пленках [5].

Таким образом, в данной работе обнаружен магниторефрактивный эффект в гранулированных пленках с туннельным магнитосопротивлением и показано, что этот эффект наиболее ярко выражен в условиях интерференции. Нами не найдено усиление экваториального эффекта Керра и ориентационного магнитооптического эффекта в ИК области спектра. Возможно, это связано с тем, что размер гранул Co в исследуемых образцах больше, чем необходимо для наблюдения гигантского АЭХ [6,7]. Другой возможной причиной отсутствия усиления этих магнитооптических эффектов в ИК диапазоне длин волн может явиться различие знаков реальной и мнимой частей недиагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости гранулированных ферромагнитных пленок металл–диэлектрик. К этим вопросам мы намерены вернуться в дальнейших публикациях.

Авторы признательны профессору М. Онума за предоставление образцов гранулированных магнитных пленок $Co-Al-O$.

Список литературы

- [1] J.C. Jacquet, T. Valet. MRS Symposium Proceeding **384**, 477 (1995).
- [2] R. Atkinson, P.M. Rodd, N.F. Kubrakov, A.K. Zvezdin, K.A. Zvezdin. J. Magn. Magn. Mater **156**, 169 (1996).
- [3] Н.Ф. Кубраков, А.К. Звездин, К.А. Звездин, В.А. Котов. ЖЭТФ **114**, 1101 (1998).
- [4] G.M. Genkin. Phys. Lett. **A241**, 293 (1998).
- [5] A. Granovsky, E. Gan'shina, M. Kuzmichov, J.P. Clerc. J. Magn. Magn. Mater (1999), в печати.
- [6] F. Brouers, A. Granovsky, A. Sarychev. A. Kalitsov. Physica **A241**, 284 (1997).
- [7] A. Panhomov, X. Yan, N. Wang, X.N. Jing, B. Zhao, K.K. Fung, J. Xhie, T.F. Yung, S.K. Wong. Physica **A241**, 334 (1997).
- [8] Г.С. Криничик, В.С. Гущин. Письма в ЖЭТФ **10**, 35 (1969).
- [9] S. Matani, H. Fujimori, S. Ohnuma. J. Magn. Magn. Mater **165**, 141 (1997).
- [10] M. Ohnuma, K. Hono, E. Abe, H. Onodera, S. Mitani, H. Fujimori. J. Appl. Phys. **82**, 646 (1997).
- [11] T.S. Eriksson, A. Hjortsberg, G.A. Niklasson, C.G. Granqvist. Appl. Opt. **20**, 2742 (1981).
- [12] Ю.И. Петров. Физика малых частиц. Наука, М. (1982).