

# Магнитооптическое исследование гранулированных пленок оксида кремния с ферромагнитными частицами CoNbTa

© А.В. Кимель, Р.В. Писарев, А.А. Ржевский, Ю.Е. Калинин\*, А.В. Ситников\*, О.В. Стогней\*,  
F. Bentivegna\*\*, Th. Rasing\*\*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\* Воронежский государственный технический университет,  
394026 Воронеж, Россия

\*\* Research Institute for Materials, University of Nijmegen,  
6525 ED Nijmegen, The Netherlands

E-mail: pisarev@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 2 апреля 2002 г.)

Гранулированные пленки оксида кремния с ферромагнитными частицами CoNbTa и различным соотношением металлической и диэлектрической фаз исследовались с помощью как стационарных, так и динамических магнитооптических методик с субпикосекундным временным разрешением. Измерения проводились в спектральной области от 1.45 до 1.70 eV. Обнаружено подобное поведение концентрационных зависимостей линейного и фотоиндуцированного эффекта Керра. Обе зависимости имеют немонотонный характер с максимумом вблизи порога перколяции.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, программ Министерства промышленности и науки.

В последние годы гранулированные нанокompозиты на основе Fe, Co и Ni с ионами других переходных металлов вызывают большой интерес. Это в первую очередь обусловлено явлением гигантского магнитосопротивления (GMR), которое наблюдается в этих материалах [1]. Кроме того, нанокompозиты характеризуются рядом других необычных магнитных, электрических, оптических и магнитооптических свойств, к числу которых можно отнести возможность изменения удельного электрического сопротивления в широких пределах, усиление оптических нелинейностей [2], корреляцию между магнитотранспортным и нелинейно-оптическими свойствами [3], высокую величину магниторефрактивного эффекта [4], а также высокую степень поглощения электромагнитного излучения в ВЧ- и СВЧ-диапазонах [5]. Несмотря на то что некоторые физические механизмы, ответственные за эти явления, до сих пор в полной мере неясны, гранулированные нанокompозиты можно с уверенностью отнести к перспективным материалам для изготовления на их основе магнитных считывающих головок и элементов магнитооптической памяти [6,7]. Таким образом, исследование магнитных, оптических и магнитооптических свойств гранулированных структур интересно как с фундаментальной, так и с прикладной точки зрения. Следует отметить, что современные требования к скорости записи и считывания информации накладывают жесткие ограничения не только на величину магнитосопротивления или нелинейной оптической восприимчивости, но и на время отклика материала на магнитное или световое возбуждение.

В настоящей работе мы сообщаем об исследовании магнитных, оптических и магнитооптических свойств гранулированных структур аморфного оксида кремния

с ферромагнитными нанокластерами на основе кобальта в зависимости от содержания металлической фазы. При этом для исследований применялись как стационарные, так и динамические магнитооптические методики, причем последние позволяли изучать магнитные и оптические свойства среды с субпикосекундным временным разрешением.

## 1. Рост и структура образцов

Гранулированные пленки ферромагнитных включений аморфного сплава на основе кобальта, ниобия и тантала в диэлектрической матрице оксида кремния с различным содержанием металлической фазы, представляющие собой типичные перколяционные системы, были получены на неподвижных сапфировых подложках методом ионно-лучевого напыления [8]. Размер металлических гранул был равен 2–5 nm в зависимости от содержания металлической фазы. Металлические наночастицы формировали гранулированную, электрически не связанную структуру до порога протекания и проводящую кластерную структуру за порогом протекания. В работе были исследованы три композита на основе оксида кремния с частицами CoNbTa и аморфная пленка металлического сплава, не содержащая оксида. При напылении пленки металлического сплава и аморфных гранулированных нанокompозитов использовались мишени двух видов: монолитные и составные. Монолитные мишени состава  $\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2$  готовились плавкой в вакууме с использованием индукционной печи из металлов определенного состава. Для приготовления сплавов использовались кобальт чистотой 99.98%, тантал и ниобий технической

Параметры исследуемых пленок

Образец	Число пластин SiO <sub>2</sub> в мишени	Состав	Содержание оксида кремния	Толщина, $\mu\text{m}$
A	0	Co <sub>86.1</sub> Nb <sub>12.2</sub> Ta <sub>1.7</sub>	—	5.0
B	9	Co <sub>53.4</sub> Nb <sub>8.3</sub> Ta <sub>1.1</sub>	Si <sub>20.2</sub> O <sub>17</sub>	4.6
C	11	Co <sub>47.3</sub> Nb <sub>7.0</sub> Ta <sub>1.4</sub>	Si <sub>23.6</sub> O <sub>20.7</sub>	4.7
D	15	Co <sub>27.7</sub> Nb <sub>3.0</sub> Ta <sub>0.7</sub>	Si <sub>26.7</sub> O <sub>41.9</sub>	4.6

чистоты с весовым содержанием компонентов в соответствии с составом сплава. Расплав соответствующего состава после механического перемешивания выливался в специально приготовленную керамическую форму. Операции плавления и разлива осуществлялись в вакууме. Из одной навески сплава выплавлялись две мишени размером  $270 \times 70 \times 14 \text{ mm}$ . Мишени шлифовались с двух сторон, припаивались к водоохлаждаемому основанию, одна из них устанавливалась в вакуумный пост для последующего распыления. Составная мишень Co–Nb–Ta + SiO<sub>2</sub> представляла собой сплавную мишень состава Co<sub>86</sub>Nb<sub>12</sub>Ta<sub>2</sub> с закрепленными на ее поверхности пластинами из монокристалла кварца толщиной  $\sim 2 \text{ mm}$  и шириной  $\sim 9 \text{ mm}$ , расположенными перпендикулярно продольной оси сплавной мишени. Изменяя число пластин кварца (в данном случае применяли 9, 11 и 15 пластин) и расстояние между ними, можно было изменить соотношение объемов напыляемых фаз (магнитной и диэлектрической), управляя таким образом составом композита. Выбор такого количества пластин кварца для составной мишени был обусловлен необходимостью получения композитов с гранулированной несвязанной и проводящей кластерной структурой, а также состава, близкого к порогу перколяции [8]. Образцы, полученные в результате напыления, представляли собой пленки толщиной  $4.6\text{--}5 \mu\text{m}$ . Толщина пленок измерялась на интерферометре Линника МИИ-4. Состав полученных композитов контролировался электронно-зондовым рентгеноспектральным микроанализом. Параметры выращенных пленок представлены в таблице.

## 2. Экспериментальная установка

Исследование стационарных магнитных свойств пленок основывалось на измерении меридионального магнитооптического эффекта Керра по методике, описанной в [9]. Использовалось излучение фемтосекундного титан-сапфирового лазера с энергией фотонов  $\hbar\omega = 1.45\text{--}1.70 \text{ eV}$  и непрерывного гелий-неонового лазера с  $\hbar\omega = 1.96 \text{ eV}$ . Чувствительность измерения поворота плоскости поляризации света при измерениях эффекта Керра составляла 10 угловых секунд. Угол падения света на образец был равен  $45^\circ$ . Напряженность постоянного магнитного поля, приложенного к образцу, менялась в диапазоне  $\pm 15 \text{ kOe}$ .

Предпринятые еще в 60-е годы теоретические [10,11], а позднее экспериментальные [12] исследования показали, что намагниченность в среде можно создать не только внешним магнитным полем, но и электрическим полем световой волны. Однако до недавнего времени этот факт использовался для изучения диамагнитных и парамагнитных материалов [13], и лишь в последнее время были начаты исследования магнитоупорядоченных кристаллов [14]. В таких исследованиях используется полностью оптическая методика изучения быстропротекающих магнитных явлений, где более интенсивный луч (накачка) приводит среду в возбужденное состояние, а менее интенсивный луч (зондирование) после взаимодействия со средой отображает ее новое состояние. При наличии импульсного источника излучения с помощью такого метода оптической накачки и зондирования можно изучать динамические явления, протекающие в твердом теле, с временным разрешением, которое ограничивается длительностью импульса.

Рассмотрим двухлучевую схему, в которой под действием импульса накачки, поляризованного по кругу, в среде наводится магнитный момент вследствие обратного эффекта Фарадея [10,11]. В этом случае в луче зондирования должен проявиться магнитооптический эффект Керра, который будет выражен в повороте плоскости поляризации на угол  $\theta_K$ , причем

$$\theta_K = \text{Im} \left( \frac{1}{n(n^2 - 1)} \int_{-\infty}^{+\infty} (p^{(+)} - p^{(-)}) E^* dt \right), \quad (1)$$

где  $n$  — коэффициент преломления среды,  $E$  — напряженность электрического поля импульса накачки,  $p^{(+)}$ ,  $p^{(-)}$  — нелинейные поляризации третьего порядка, индуцированные правокруговым поляризованным импульсом накачки и право- (лево-)круговым поляризованным импульсом зондирования [15]. В дальнейшем это явление будем называть динамическим магнитооптическим эффектом Керра.

Динамические измерения проводились по методике, описанной в [15]. При использовании излучения фемтосекундного титан-сапфирового лазера ( $\hbar\omega = 1.45\text{--}1.60 \text{ eV}$ ) с длительностью импульса  $100 \text{ fs}$  и частотой повторения  $82 \text{ MHz}$  лучи накачки и зондирования при соотношении интенсивностей  $10:1$  фокусировались на образец в пятно диаметром  $100 \mu\text{m}$  для луча накачки и немного меньше для луча зондирования. Пространственная энергетическая экспозиция в пересчете на один импульс накачки для большинства измерений составляла  $10 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Углы падения для лучей накачки и зондирования составляли  $20$  и  $30^\circ$  соответственно. Керровское вращение измерялось как функция от времени задержки между импульсами и энергии фотонов излучения. Для устранения возможных ложных сигналов проводились измерения фотоиндуцированного вращения в зависимости от степени эллиптичности поляризации

накачки. Максимум измеряемого эффекта наблюдался при круговой накачке, что находится в полном соответствии с теорией динамического магнитооптического эффекта Керра.

### 3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены полевые зависимости эффекта Керра для пленок *C* и *D*. Полевые зависимости характеризуются узким гистерезисом и практически достигают насыщения в полях  $\pm 15$  кОе. Небольшие поля

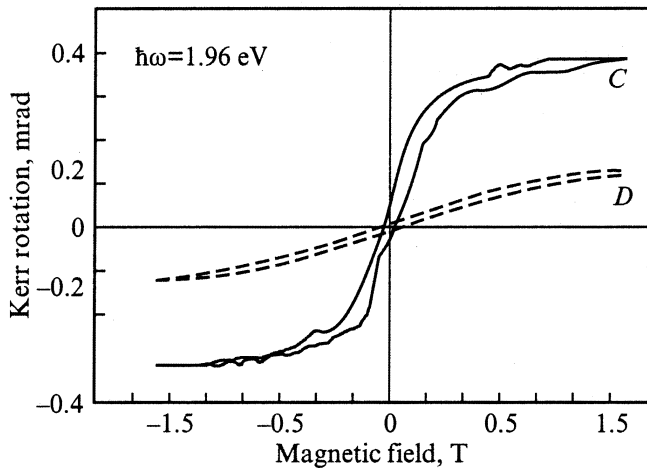


Рис. 1. Полевые зависимости стационарного меридионального эффекта Керра в пленках *C* и *D*.

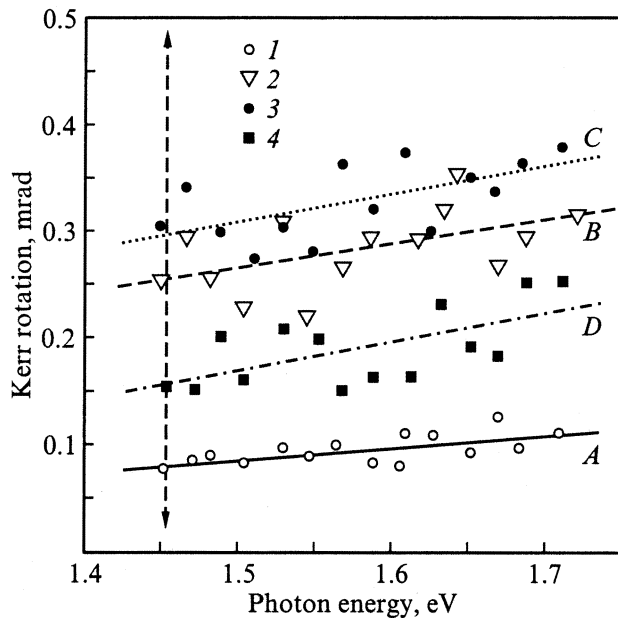


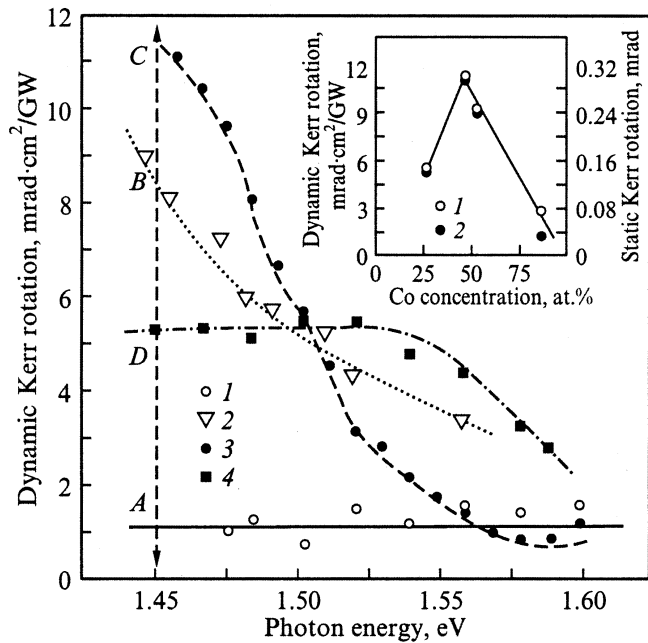
Рис. 2. Спектральные зависимости стационарного меридионального эффекта Керра для пленок *A* (1), *B* (2), *C* (3) и *D* (4) в поле 3 кОе. Линиями показаны результаты линейной аппроксимации экспериментальных данных.

насыщения указывают на то, что осажденные в матрице  $\text{SiO}_2$  частицы  $\text{CoNbTa}$  являются ферромагнитными. На спектральных зависимостях в исследуемом диапазоне энергий фотонов не было обнаружено какой-либо заметной дисперсии (рис. 2). В то же время прослеживается немонотонная зависимость величины эффекта от содержания  $\text{Co}$ , максимум которой находится примерно при концентрации кобальта 45 at.%. Отметим, что в гранулированных пленках величина магнитооптического эффекта Керра в два-три раза больше, чем в металлическом сплаве.

Исследование временного поведения эффекта Керра показало, что сигнал наблюдается только в той области, где есть перекрытие импульсов накачки и зондирования. Следует отметить, что в гранулированных структурах значительный вклад в величины нелинейно-оптических эффектов, и в частности динамического магнитооптического эффекта Керра, могут вносить эффекты усиления локального поля, которые проявляются во время перекрытия импульсов. После прекращения накачки эффекты локального поля быстро затухают по мере потери оптической когерентности. Этот факт может являться причиной того, что динамический эффект Керра наблюдается только во время перекрытия импульсов накачки и зондирования. Другим фактором, который объясняет такое поведение эффекта Керра, может быть короткое время жизни неравновесной спиновой поляризации, связанное как с малым временем жизни электронов в возбужденном состоянии [16], так и малым временем жизни спиновых возбуждений [5].

Спектральные зависимости динамического магнитооптического эффекта Керра показаны на рис. 3. В отличие от статического эффекта динамический эффект проявляет сильную дисперсию во всех гранулированных структурах. Спектральные зависимости указывают на наличие электронных переходов в районе 1.45 eV или при более низкой энергии, выходящей за пределы рабочей области титан-сапфирового лазера. Следует отметить, что в монокристаллической пленке  $\text{CoNbTa}$  динамический эффект Керра практически не зависит от энергии фотонов. Таким образом, очевидно, что электронный переход вблизи 1.45 eV (или при более низкой энергии) обусловлен процессами, происходящими в наночастицах  $\text{CoNbTa}$ , и его проявление можно установить только методом, основанным на измерении динамического магнитооптического эффекта Керра. По нашему мнению, резонансное поведение нелинейного магнитооптического сигнала вблизи 1.45 eV вызвано эффектами усиления локального поля вблизи плазмонных переходов в наночастицах  $\text{CoNbTa}$ .

На вставке к рис. 3 показаны зависимости динамического и стационарного магнитооптических эффектов Керра от содержания кобальта в гранулированных пленках при энергии фотонов  $\hbar\omega = 1.45$  eV. Удивительной оказалась идентичность концентрационных зависимостей этих явлений. Этот результат свидетельствует о том, что имеет место корреляция между стационарным и динамическим эффектами Керра. Отметим, что



**Рис. 3.** Спектральные зависимости динамического эффекта Керра для пленок А (1), В (2), С (3) и D (4). Линиями показаны результаты линейной аппроксимации экспериментальных данных. На вставке показаны стационарный (1) и динамический эффект Керра (2) как функции содержания кобальта.

ранее сообщалось об экспериментальном наблюдении корреляции между магнитотранспортными и нелинейно-оптическими свойствами в гранулированных нанокompозитах [3]. Выявление конкретных механизмов, ответственных за взаимосвязь всех этих явлений, представляется интересной задачей для дальнейших исследований.

Таким образом, в работе были получены и исследованы методами стационарной и динамической магнитооптики гранулированные нанокompозиты ферромагнитного сплава  $\text{CoNbTa}$  в матрице оксида кремния с различным содержанием кобальта. Изучены спектральные и концентрационные зависимости статического и динамического магнитооптических эффектов Керра и проведено их сравнение. Из спектральных исследований линейного эффекта Керра следует, что он характеризуется слабой и монотонной зависимостью от энергии фотонов. В противоположность этому спектральные исследования динамического эффекта Керра позволяют утверждать, что в гранулированных пленках имеют место электронные переходы при энергиях фотонов менее 1.45 eV. Различие в стационарных и динамических спектральных зависимостях можно объяснить эффектами усиления локального поля вблизи плазмонного резонанса в металлических гранулах. Концентрационные зависимости стационарного и динамического эффектов Керра имеют немонотонный характер с максимумом вблизи порога перколяции, когда содержание кобальта составляет около 45 at.%.

## Список литературы

- [1] A.E. Berkovitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S. Zhang, F.E. Spada, F.T. Parket, A. Hutten, G. Thomas. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3745 (1992).
- [2] V.M. Shalaev, A.K. Sarychev. *Phys. Rev. B* **57**, 13 265 (1998).
- [3] T.V. Murzina, T.V. Misuryaev, A.F. Kravets, J. Gudde, D. Schuhmacher, G. Marowsky, A.A. Nikulin, O.A. Aktsipetrov. *Surf. Sci.* **482–485**, 1101 (2001).
- [4] Е.А. Ганьшина, А.Б. Грановский, Б. Диени, Р.Ю. Кумаринова, А.Н. Юрасов. *ФТТ* **42**, 1860 (2000).
- [5] Л.В. Луцев. *ФТТ* **44**, 97 (2002).
- [6] A. Inoue, T. Zhang, H. Koshida, A. Makino. *J. Appl. Phys.* **83**, 6326 (1998).
- [7] R.J. Gambino, T.R. McGuire. *J. Appl. Phys.* **57**, 3906 (1985).
- [8] Ю.Е. Калинин, А.Т. Пономаренко, А.В. Ситников, О.В. Стогней. *Физика и химия обраб. материалов* **5**, 14 (2001).
- [9] А.Г. Банщикова, А.В. Кимель, В.В. Павлов, Р.В. Писарев, Н.С. Соколов, Th. Rasing. *ФТТ* **42**, 884 (2000).
- [10] Л.П. Питаевский. *ЖЭТФ* **39**, 1450 (1960).
- [11] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Электродинамика сплошных сред*. Наука, М. (1992). 664 с.
- [12] P. van der Ziel, P.S. Pershan, L.D. Malmstrom. *Phys. Rev. Lett.* **15**, 190 (1965).
- [13] *Optical Orientation, Modern Problems in Condensed Matter Science* / Ed. F. Meier and B.P. Zacharchenya. North-Holland, Amsterdam (1984). Vol. 8. [Оптическая ориентация / Под ред. Б.П. Захарчени, Ф. Мейера. Наука, Л. (1989). 409 с.].
- [14] Ganping Ju, A. Vertikov, A.V. Nurmikko, C. Canady, Gang Xiao, R.F.C. Farrow, A. Cebollada. *Phys. Rev. B* **57**, R700 (1998).
- [15] A.V. Kimel, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, V.N. Gridnev, F. Bentivegna, Th. Rasing. *Phys. Rev. B* **62**, R10 610 (2000).
- [16] A.V. Kimel, R.V. Pisarev, F. Bentivegna, Th. Rasing. *Phys. Rev. B* **64**, 201 103(R) (2001).