УДК 537.632

# МАГНИТОРЕФРАКТИВНЫЙ ЭФФЕКТ В НАНОКОМПОЗИТАХ

 $oxed{{f B. C. Гущин}}$  , Е. А. Ганьшина, А. А. Козлов, И. В. Быков $^*$ 

(кафедра общей физики; кафедра магнетизма)

E-mail: eagan@magn.ru

В инфракрасном диапазоне длин волн 1.5–20 мкм исследованы оптическое отражение и четный по намагниченности магниторефрактивный эффект (MPЭ) в нанокомпозитах ферромагнетик (Co, Fe, CoFe, CoFeZr) — диэлектрическая матрица (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, MgF), обладающих в составах вблизи порога перколяции туннельным магнитосопротивлением. Изучена дисперсия этих эффектов в зависимости от поляризации, угла падения излучения и внешнего магнитного поля. Показано, что экстремальные значения MPЭ соответствуют минимальным значениям оптического отражения и достигают величин, в десятки раз превосходящих традиционные эффекты Керра. Экспериментальные данные свидетельствуют о природе этого эффекта как о результате спин-зависимого туннелирования электронов проводимости на оптических частотах.

## Введение

Нанокомпозиты ферромагнитный металл-диэлектрик с содержанием металла вблизи порога перколяции в последние 10-15 лет вызывает большой интерес и экспериментаторов, и теоретиков, и технологов. Наряду с большим эффектом туннельного магнитосопротивления (ТМС) в этих материалах наблюдаются эффекты, связанные с изменением диэлектрической проницаемости в высокочастотных диапазонах электромагнитного излучения при намагничивании ферромагнитного композита. Эффект изменения импеданса в радио- и СВЧ-диапазонах получил название высокочастотного магнитосопротивления, или магнитоимпенданса [1, 2], а в случае оптических частот — магниторефрактивного эффекта [3]. В настоящей работе речь пойдет о МРЭ в металлодиэлектрических гранулированных структурах.

Магниторефрактивный эффект заключается в изменении оптических свойств (коэффициентов отражения, пропускания и поглощения света) магнетиков с большим МС при их намагничивании [3-5] и является частотным аналогом ТМС. Так же как и последний, МРЭ, по-видимому, возникает в результате спин-зависимого туннелирования поляризованных электронов проводимости через диэлектрические прослойки между ферромагнитными гранулами. МРЭ должен проявляться наиболее ярко в ИК области спектра, где вклад электронов проводимости играет доминирующую роль. Известно, что изменение интенсивности вследствие классических магнитооптических (МО) эффектов во всех ферромагнитных металлах и сплавах на их основе (нечетные и четные по намагниченности эффекты Керра [6-9] и ориентационный MO эффект [10]) не превышает  $10^{-2}-10^{-4}$ в УФ и видимой областях спектра. В противоположность этому в многослойных структурах [3-4] и в нанокомпозитах [11] обнаружили магнитоиндуцированные изменения оптических параметров в ИК диапазоне, в десятки раз большие традиционных МО эффектов на отражение. Большие значения  $\sim 1\%$  МРЭ найдены в пленках гранулированного ферромагнитного кобальта, внедренного в диэлектрическую матрицу сапфира [12], но максимальное значение МРЭ  $\sim 1.3\%$  получено в нанокомпозите ( $\rm Co_{0.4}\,Fe_{0.6}$ )48 (MgF)52 [13, 14]. МРЭ в наноструктурах проявляет своеобразную частотную зависимость [5, 11, 15], а также этот эффект является нелинейным по намагниченности. Все это позволяет говорить о МРЭ как о новом негироэлектрическом эффекте, природа которого отлична от природы традиционных магнитооптических эффектов.

Впервые МРЭ был предсказан, теоретически исследован и экспериментально подтвержден для мультислоев Fe/Cr [3]. Теория этого эффекта развита для металлических многослойных систем в [16–18] и для гранулированных металлических систем в [19, 20]. Наиболее простое соотношение для МРЭ металлических систем в спектральной области Хагена-Рубенса получено в [19], где показано, что при нормальном падении света величина магнитоиндуцированного отклика имеет вид

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(H=0) - R(H)}{R(H=0)} =$$

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

Здесь R(H=0) и R(H) — коэффициенты отражения света образцом,  $\rho(H=0)$  и  $\rho(H)$  — электросопротивления в отсутствие магнитного поля и в магнитном поле H соответственно;  $\Delta \rho/\rho$  — абсолютное значение MC. Из выражения (1) следует, что большие значения MPЭ должны наблюдаться

<sup>\*)</sup> Институт геохимии и аналитической химии РАН им. В. И. Вернадского.

в системах с большим МС и малым коэффициентом отражения, т. е. не в металлических системах, а в наноструктурах. Необходимо отметить, что выражение (1) заведомо неприменимо к магниторефрактивному эффекту в нанокомпозитах, так как его вывод основан на частотной зависимости металлической проводимости типа Друде-Лоренца.

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. Из простых оценок характерного времени туннелирования t, которое при ширине туннельного барьера  $a=1-3\,$  нм и фермиевской скорости  $v_F=10^8$  см/с составляет  $t=a/v_F=10^{-15}$  – $10^{-16}$  с, следует, что в ближней инфракрасной области спектра ( $\lambda = 1-10$  мкм),  $\omega au \ll 1$ . Кроме того, очевидно, что в ближней инфракрасной области спектра характерное время туннелирования много меньше периода электромагнитной волны. Так как  $\omega au \ll 1$  и вероятность туннелирования электронов на частоте  $E_F + \hbar \omega$  зависит от фактора  $\left[e^{\omega au}-1\right]^2$  и мощности падающего излучения, то в ИК диапазоне спектра при плотности мощности излучения в пятне засветки заведомо меньшей 1  $B\tau/cm^2$ , туннельное сопротивление  $\rho$  не зависит от частоты. Феноменологически рассматривая туннельный зазор как параллельно включенные электрическое сопротивление и конденсатор, можно найти, как это сделано в [5], сначала оптическую проводимость нанокомпозита, а затем определить магниторефрактивный эффект (в [5] это сделано для p-компонеты линейно поляризованного света) через МС и оптические параметры. При нормальном падении света получаем выражения:

в случае отражения излучения

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

и в случае прохождения излучения

$$\tau = \frac{\Delta T}{T} = \frac{1}{2} \frac{\Delta \rho}{\rho} T k^2 \frac{2n^2 + n}{n^2 + k^2}.$$
 (3)

Видно, что MPЭ в нанокомпозитах с туннельным MC сложным образом связан с показателями преломления  $n(\nu)$  и поглощения  $k(\nu)$  среды. Эта связь указывает на возможность существования MPЭ как отрицательного, так и положительного знака, что позволяет объяснить экспериментальные данные по MPЭ, представляемые ниже.

В настоящей работе предпринята попытка комплексного изучения оптических свойств и МРЭ в отраженном излучении в ряде нанокомпозитов ферромагнитный металл (Co, Fe, CoFe, аморфный сплав

СоFeZr) в диэлектрических матрицах окислов алюминия, кремния и титана. В отличие от ранних работ [5, 21] особое внимание мы уделили учету эффектов интерференции и затухания света как в немагнитных слоях, так и в самой ферромагнитной пленке. Именно при учете оптических параметров материала подложки достигаются наилучшие количественные соответствия эксперимента и теории.

Принципиально важным для выяснения природы магниторефрактивного эффекта в нанокомпозитах является экспериментальное подтверждение того, что МРЭ в этих системах связан с туннельным магнитосопротивлением, а не является следствием, как уже говорилось, каких-либо других причин, например четных и нечетных магнитооптических эффектов Керра или влияния магнитного поля на оптические свойства диэлектрической матрицы. Одним из прямых доказательств может служить установление корреляции между полевыми зависимостями МРЭ и МС, измеряемыми на одних и тех же образцах и в одном и том же диапазоне магнитных полей. Для этой цели были проведены исследования полевой зависимости МРЭ в ряде нанокомпозитов.

Причины, по которым обращаются к исследованиям поляризационных и угловых зависимостей новых эффектов, в частности MPЭ, заключаются в том, что по характеру частотных зависимостей спектров  $\xi(\nu)$  для p- и s-волн, а также зависимости спектров  $\xi_{p,s}(\nu)$  от угла падения излучения на ферромагнитное зеркало отсеиваются те или иные эффекты. Наконец, основная причина измерений  $\xi_{p,s}(\nu,\varphi)$  состоит в получении информации, необходимой для построения моделей MPЭ и проверки их соответствия экспериментам. В данной работе мы проводили поляризационные и угловые исследования MPЭ и оптического отражения в ряде гранулированных нанокомпозитов.

Особое внимание в работе обращено на еще не выясненные или дискуссионные вопросы. В частности, на связь между изменениями оптических и магнитооптических свойств и туннельным МС металлодиэлектрических гранулированных пленок в широком диапазоне концентрации компонентов, включающем порог перколяции, а также на роль диэлектрической матрицы в формировании МРЭ.

## 1. Образцы

Исследуемые образцы нанокомпозитов можно распределить в соответствии со способами синтезирования. Пленки гранулированных нанокомпозитов  $\mathrm{Co}_x(\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3)_{100-x}$ ,  $\mathrm{Co}_x(\mathrm{SiO}_2)_{100-x}$ ,  $\mathrm{Co}_{50.2}\mathrm{Ti}_{9.1}\mathrm{O}_{40.7}$  были изготовлены методом радиочастотного магнетронного распыления [13]. Все образцы содержат гранулы ферромагнитного металла или сплава, размер которых 2-5 нм, и которые хаотично распределены в матрицах оксидов алюминия, кремния и титана. Составы образцов, значения их толщин, величины МС в поле H=10 к3; максимальные значения

Составы	Толщина	MC, %	МРЭ		ЭЭК, $\delta \cdot 10^3$ ,
образцов	пленок, мкм	$\delta H = \pm 10$ кЭ	$\xi(\nu)$ , %	$\nu$ , cm <sup>-1</sup>	0.97 эВ
Co <sub>43</sub> Al <sub>22</sub> O <sub>35*</sub>	2	8.5	0.8	1100	
Co <sub>47</sub> Al <sub>19.3</sub> O <sub>33.7</sub>	2.1	6			-1.26
Co <sub>50.3</sub> Al <sub>20.4</sub> O <sub>29.3</sub>	2.62	9.2	-1.0	1200	-6.2
Co <sub>51.5</sub> Al <sub>19.5</sub> O <sub>29</sub>	1.91	9.2	-0.9	1100	-5.58
Co <sub>52.4</sub> Al <sub>18.6</sub> O <sub>29</sub>	2.02	7.8			-6.6
Co <sub>55.2</sub> Al <sub>19</sub> O <sub>25.8</sub>	2.62	4.8	-0.6	1000	-7.1
Co <sub>52.3</sub> Si <sub>12.2</sub> O <sub>35.5</sub>	1.67	4.1	+0.7	1300	-10.4
Co <sub>50.2</sub> Ti <sub>9.1</sub> O <sub>40.7</sub>	2.02	5.8	-0.7	1030	-3.65

Таблица 1

величины МРЭ в поле 1.6 кЭ для  $\varphi=45^\circ$ , а также значения ЭЭК [22] тех же образцов при  $\varphi=70^\circ$  в поле 2.25 кЭ и для энергии световых квантов 0.97 эВ приводятся в табл. 1 и 2. Детальное описание процедуры приготовления образцов, методы и результаты измерений их химического состава, структуры, электрических и магнитных параметров даны в [13, 23].

Таблица 2

Составы образцов	МС, % (10 кЭ)	ЭЭК, δ·10 <sup>3</sup> , 1.7 эВ
Co <sub>45</sub> Fe <sub>45</sub> Zr <sub>10</sub>		+6
$(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{34}(\text{SiO}_{1.7})_{66}$	2.8	-6
$(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{40}(SiO_{1.7})_{60}$	3.3	-10
$(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{47}(SiO_{1.7})_{53}$	2.3	-15.8
$(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{57}(\text{SiO}_{1.7})_{43}$	0.15	-12.5

Пленки аморфного ферромагнитного сплава  $Co_{45}$   $Fe_{45}$   $Zr_{10}$  в аморфной матрице двуокиси кремния  $\alpha$ - $SiO_2$  были получены методом ионно-лучевого распыления составных мишеней [24]. 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 непрерывным набором концентраций металлической фазы (размер гранул от 2 до 7 нм в зависимости от соотношения фаз).

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  $\sim 4$  нм, толщина пленок 0.2-0.8 мкм [25].

# 2. Методы исследования и детали экспериментов

В интервале частот 500-7000 см<sup>-1</sup> дисперсия оптического отражения и магниторефрактивного эффекта в зависимости от частоты, поляризации, угла падения света и магнитного поля измерялась на

установке, описанной в [5], в которую мы внесли ряд конструктивных изменений, касающихся в основном МО приставки Фурье-спектрометра FTIR PU9800.

В МО приставку (рис. 1) введены съемные зеркала, что позволило проводить измерения МРЭ не только при падении излучения на образец под фиксированным углом  $\varphi=50^\circ$ , но и при меньших углах. В измерениях МРЭ при угле падении света, близком к нормальному ( $\varphi \sim 8^{\circ}$ ), например, исключается вклад экваториального эффекта Керра (ЭЭК), который при нормальном падении света зануляется. Постоянный магнит был заменен электромагнитом  $(H_{\rm max} \approx 1700 \ \Theta)$ , что позволило создавать два устойчивых магнитных состояния образца: намагниченное до  $\pm M(H)$  и полностью размагниченное  $M_r=0$ при H=0, что необходимо для наблюдения четных эффектов. Введение сеточного поляризатора KRS-5 позволило проводить измерения либо на p-, либо на s-компонентах линейно поляризованного света. МО приставка помещалась в магнитный экранирующий кожух, чтобы исключить или уменьшить как влияние внешних магнитных полей и фоновых засветок, так и влияние магнитного поля на электронную схему и приемник излучения спектрометра. И, наконец, мы разработали методику измерения разности интенсивностей излучения, отраженного образцом

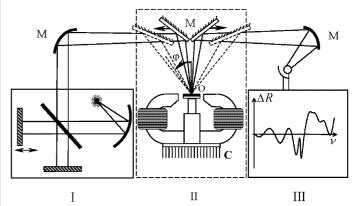


Рис. 1. Блок-схема измерительной установки для измерения магниторефрактивного эффекта: I — фурье—спектрометр, II — магнитооптический модуль: O — образец, M — зеркала, C — электромагнит на теплоотводящей пластине; III — регистрирующая часть

<sup>\*</sup> ar.%.

в размагниченном I(0) и намагниченном I(H) состояниях, а не отношение этих интенсивностей, как было раньше [5]. Эта операция позволила уменьшить «вклад» шумов, что оказывается особенно важным при малых значениях измеряемых эффектов. Деление полученной разности  $\Delta I$  на интенсивность света, измеренную при H=0, определяет величину MPЭ в соответствии с формулой

$$\xi(\nu, H) = \frac{I(\nu, H = 0) - I(\nu, H)}{I(\nu, H = 0)} =$$

$$= \frac{R(\nu, H = 0) - R(\nu, H)}{R(\nu, H = 0)},$$
(4)

в которой интенсивности света заменены пропорциональными им энергетическими коэффициентами отражения  $R(\nu, H=0)$  и  $R(\nu, H)$ .

В результате проведенных изменений и усовершенствований стало возможно проводить измерения оптического отражения и MPЭ не только при наклонном падении света, но и при нормальном падении в полностью размагниченных образцах, а не в состоянии остаточного намагничивания, как было раньше. В результате применения операций накопления (по 1000 сканам) взаимно обратимых циклов и сглаживания уровень шумов был понижен до  $10^{-4}$  в области частот 500–1500 см<sup>-1</sup>. Все измерения оптического отражения и MPЭ проведены со спектральным разрешением 4 см<sup>-1</sup> при комнатной температуре.

В используемой нами геометрии наблюдения МО эффектов на p-волне линейно-поляризованного света ( $\mathbf{E} \perp \mathbf{M}$ ) одновременно могут проявляться три интенсивностных эффекта: линейный по намагниченности  $\mathbf{M}$  ЭЭК и два квадратичных по  $\mathbf{M}$  — ориентационный (ОМЭ) и МРЭ. Применяемые для исследования магнитооптических эффектов Керра чувствительные динамические МО установки на 2-3 порядка выше статических [2], но они принципиально не могут быть использованы в ряде случаев. В частотности при перемагничивании образца невозможно обнаружить четные МО эффекты. Такие эффекты можно выделить при однополярном намагничивании ферромагнетика [7, 10].

Нами разработана компьютерная программа для расчета комплексных показателей преломления исследуемого слоя, входящего в многослойную систему, в предположении, что оптические характеристики других слоев известны либо из литературных источников, либо могут быть введены в программу в качестве известных данных из предварительных расчетов более простых систем. Так, например, для расчета оптических констант пленки в четырехслойной системе воздух-пленка-подложка-воздух, оптические параметры подложки, вводимые в модель, предварительно рассчитываются из экспериментальных данных, полученных для трехслойной системы воздух-подложка-воздух. Созданная программа

позволяет варьировать как толщину слоев, так и угол падения света, и поляризацию.

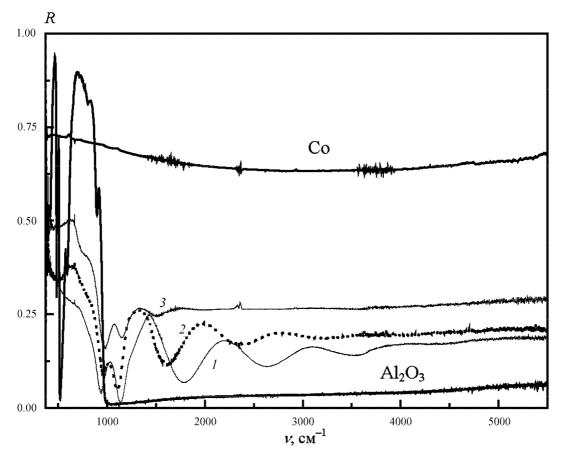
Нахождение пар оптических констант неизвестного слоя представляется следующим образом. На каждой частоте в координатах показателей преломления и поглощения строятся изолинии (номограммы) экспериментально измеренных коэффициентов пропускания или отражения, их пересечение выявляет пару n и k, удовлетворяющих значениям  $R(\nu)$ и  $T(\nu)$  на рассматриваемой частоте излучения  $\nu$  и соответственно являющихся решением. Такая операция осуществляется для каждого значения u в измеряемом интервале частот, шаг, с которым меняется частота, задается спектральным разрешением спектрометра при измерении  $R(\nu)$  и  $T(\nu)$ . Проверка работоспособности компьютерной программы проводилась на трехслойной системе «плоская пластина кремния в воздушной среде», а также на жидкостях (вода, спирт).

#### 3. Результаты эксперимента и их обсуждение

# а) Дисперсия оптических и магнитооптических спектров

На рис. 2 приведены спектры частотной зависимости коэффициента отражения  $R(\nu)$  нанокомпозитов  $Co_{47}Al_{19.3}O_{33.7}$ ,  $Co_{51.5}Al_{19.5}O_{29}$ ,  $Co_{55.2}Al_{19}O_{25.8}$ , а также сапфира  $\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3$  и поликристаллического кобальта, измеренные при угле падения света  $45^{\circ}$  на p-компоненте линейно поляризованного света. В диапазоне волновых чисел 3500-5500 см $^{-1}$ для образца  ${
m Co}_{47}{
m Al}_{19.3}{
m O}_{33.7},$  в диапазоне 3000- $5500\,$  см $^{-1}\,$  для образца  ${
m Co}_{51.5}{
m Al}_{19.5}{
m O}_{29}\,$  и в диапазоне 2000– $5500\,\,\mathrm{cm^{-1}}\,$  для образца  $\mathrm{Co_{55.2}\,Al_{19}O_{25.8}}$ отражательная способность практически не зависит от частоты. При меньших энергиях характер спектров  $R(\nu)$  этих композитов усложняется. Известно [26], что вблизи порога перколяции нанокомпозиты становятся относительно прозрачными, поэтому даже для сравнительно толстых пленок нельзя полностью пренебрегать интерференцией света, отраженного на границах пленка-воздух и пленка-подложка. По этой причине для исследуемых нанокомпозитов в области больших длин волн в спектрах коэффициента отражения  $R(\nu)$  наблюдаются осцилляции, при этом наибольшие изменения  $R(\nu)$  приходятся на область  $1000-3500~{
m cm}^{-1}$  для образца  $\mathrm{Co}_{47}\,\mathrm{Al}_{19.3}\,\mathrm{O}_{33.7},\,1000{-}3000\,\,\mathrm{cm}^{-1}\,$  для образца  $\mathrm{Co}_{51.5}\,\mathrm{Al}_{19.5}\,\mathrm{O}_{29}$  и  $1000{-}1800\,\,\mathrm{cm}^{-1}\,$  для образца  $\mathrm{Co}_{55.2}\,\mathrm{Al}_{19}\,\mathrm{O}_{25.8}$ . Ниже  $1000\,\,\mathrm{cm}^{-1}\,$  осцилляции исчезают, что связано с резким возрастанием поглощения в матрице Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [26]. В спектре частотной зависимости коэффициента отражения поликристаллического кобальта не обнаружено каких-либо особенностей и величина  $R(
u)_{
m Co}$  плавно изменяется в пределах 65–75%.

Сопоставление спектров отражения линейно поляризованного излучения всех нанокомпозитов, со-



Puc.~2.~ Частотная зависимость коэффициента отражения  $R(\nu)$  нанокомпозита  $Co_{47}$  Al  $_{19.3}$  O  $_{33.7}$  (1),  $Co_{51.5}$  Al  $_{19.5}$  O  $_{29}$  (2),  $Co_{55.2}$  Al  $_{19}$  O  $_{25.8}$  (3), Al  $_2$  O  $_3$  и поликристаллического кобальта для p-компоненты линейно поляризованного света;  $\varphi=45^\circ$ 

держащих гранулированный ферромагнетик Со, диспергированный в матрице оксида алюминия с соответствующим спектром кристаллического  $Al_2O_3$ , приводит к заключению, что наиболее ярко выраженный минимум в спектрах  $R(\nu)$  нанокомпозитов в области частот 950-1100 см $^{-1}$  связан с возбуждением оптической продольной фононной моды в  $Al_2O_3$  [15, 27, 28]. В нанокомпозитах, полученных методом тандемного радиочастотного магнетронного распыления [12, 13], диэлектрическая матрица оксида алюминия является аморфной с более тесным расположением атомов в ближайшем окружении, чем в кристаллическом аналоге. Поэтому можно считать, что экспериментально установленный факт уширения обсуждаемого минимума обусловлен аморфной природой матрицы нанокомпозита и нанокристалличностью (а возможно, и аморфностью) гранул металла.

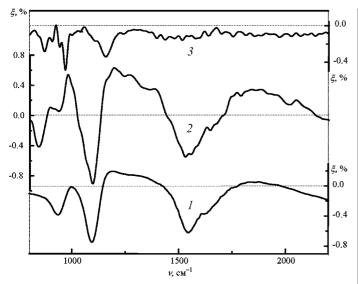
Утверждение об интерференционном происхождении осцилляций в спектрах  $R(\nu)$  подтверждается следующими соображениями. Разность частот  $\Delta \nu$  между двумя соседними экстремальными значениями коэффициента отражения  $R(\nu)$  определяется формулой [29]

$$\Delta\nu = \frac{1}{2d\sqrt{n^2 - \sin^2\varphi}},\tag{5}$$

где  $\varphi$  — угол падения, n — показатель преломления пленки, d — толщина пленки.

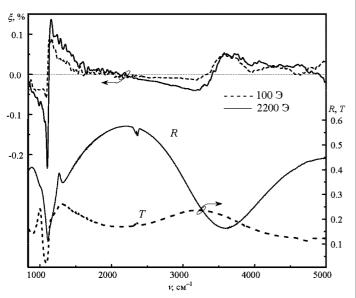
Найденная из спектров частотной зависимости коэффициента отражения  $R(\nu)$  (рис. 2), величина интервала  $\Delta \nu$  составляет  $\sim 700$  см $^{-1}$  для образца  ${\rm Co}_{51.5}\,{\rm Al}_{19.5}\,{\rm O}_{29}$  в диапазоне частот 1300-3000 см $^{-1}$ . Согласно [30] типичный показатель преломления для нанокомпозита из области перколяции  $n\sim 3.5$ . Полученная в соответствии с (5) оценка толщины образца, например, для нанокомпозита  ${\rm Co}_{51.5}\,{\rm Al}_{19.5}\,{\rm O}_{29}$  составляет 2.1 мкм, что хорошо согласуется с измеренным значением толщины этого образца, которое равно 1.91 мкм (см. табл. 1).

Ha 3 представлены рис. спектры тотной зависимости МРЭ  $\xi(\nu)$ нанокомпо-Co<sub>43</sub> Al<sub>22</sub> O<sub>35</sub> (1),  $Co_{51.5}Al_{19.5}O_{29}$  $\mathsf{Co}_{55.2}\,\mathsf{Al}_{19}\,\mathsf{O}_{25.8}$  (3) для p-компоненты линейно поляризованного света, полученные в магнитном поле 1.6 кЭ при угле падения 45°. Наибольшие значения МРЭ достигаются в тех областях спектра, где отражение минимально, так, например, для образца  ${
m Co}_{51.5}\,{
m Al}_{19.5}\,{
m O}_{29}$  при  $u\sim 1100\,$  см $^{-1}\,$  МРЭ достигает максимальной величины 0.9%. В области частот больших  $1000 \text{ см}^{-1}$ , так же как и коэффициент отражения, МРЭ носит осцилляционный характер с «периодами», уменьшающимися с ростом частоты.



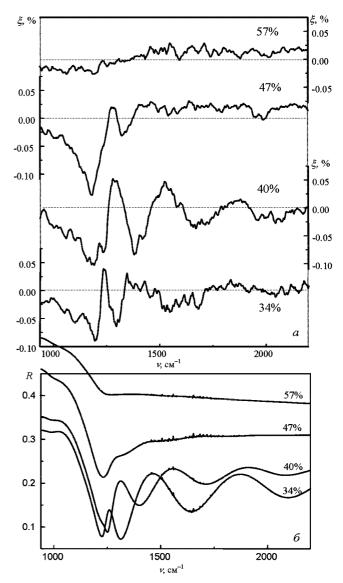
Puc.~3. Дисперсия магниторефрактивного эффекта нанокомпозитов Co  $_{43}$  Al  $_{22}$  O  $_{35}$  (I), Co  $_{51.5}$  Al  $_{19.5}$  O  $_{29}$  (2), Co  $_{55.2}$  Al  $_{19}$  O  $_{25.8}$  (3) для p-компоненты линейно поляризованного света;  $\varphi=45^\circ$ 

Более тонкому образцу  $Co_{51.5}\,Al_{19.5}\,O_{29}$  соответствует больший период осцилляций  $\Delta\nu\sim700\,$  см  $^{-1}$  в диапазоне частот  $1300-3000\,$  см  $^{-1}$  как в  $\xi(\nu)$ , так и в  $R(\nu)$ . По характеру дисперсии спектров MP9 и коэффициента отражения, а также по величине периодов осцилляций, полученных в теоретических оценках с учетом реальных толщин и комплексных показателей преломления данных нанокомпозитов, можно утверждать, что осцилляции  $\xi(\nu)$ , так же как и  $R(\nu)$ , имеют интерференционное происхождение. Об этом свидетельствуют и данные исследований дисперсии спектров оптического отражения MP9 образцов с наночастицами ферромагнитного Co, внедренного в различные диэлектрические матрицы.



Puc. 4. Дисперсия коэффициента отражения  $R(\nu)$  на p-компоненте линейно поляризованного света ( $\varphi=45^\circ$ ), коэффициента пропускания  $T(\nu)$  ( $\varphi=0^\circ$ ) и магниторефрактивного эффекта  $\xi(\nu)$  ( $\varphi=8^\circ$ ) для двух значений магнитного поля H нанокомпозита (Fe)  $_{0.55}$  (SiO  $_2$  )  $_{0.45}$ 

Спектры частотной зависимости магниторефрактивного эффекта и коэффициента отражения некоторых нанокомпозитов гранулированный ферромагнитный металл в матрице окиси кремния приводятся на рис. 4, 5. В общих чертах характер этих спектров аналогичен соответствующим спектрам нанокомпозитов кобальта в матрице оксида алюминия. В спектрах отражения, пропускания и МРЭ на р-компоненте (рис. 4) для нанокомпозита (Fe) $_{0.55}$  (SiO $_2$ ) $_{0.45}$ , напыленного на подложку кремния, в области частот 500-1300 см $^{-1}$  наблюдается ряд полос поглощения матрицы  $SiO_2$  — это оптические фононные моды, которые связаны с поперечными  $\nu \sim 800$  и  $1070~{
m cm}^{-1}$  и продольными  $u \sim 1200~{
m H}~1240~{
m cm}^{-1}$ фононными модами [31, 32]. В области волновых чисел  $u > 1300 \, {
m cm}^{-1}$  видны характерные биения, обусловленные интерференцией излучения в пленке нанокомпозита. Оценка толщины пленки, полученная на основании формулы (5) дает  $d \sim 0.58$  мкм,



Puc.~5.~ Частотная зависимость (a) магниторефрактивного эффекта и  $(\delta)$  коэффициента отражения нанокомпозитов  $(\mathrm{Co}_{45}\,\mathrm{Fe}_{45}\,\mathrm{Zr}_{10})_x(\mathrm{SiO}_{1.7})_{100-x};~x=57,~47,~40,~34;$  магнитное поле  $1700~\Im;~\varphi=8^\circ$ 

что находится в согласии с экспериментальными данными для этой пленки:  $d_{\rm exp}=0.5\,$  мкм [25]. Следует заметить, что в данном нанокомпозите величина MPЭ в максимуме составляет  $0.2\,$ % в поле  $H=2.2\,$  кЭ. Не велико и магнитосопротивление образца в этом же магнитном поле ( $\Delta\rho/\rho$  не превышает  $1.2\,$ %). Отметим еще одно обстоятельство, связанное с влиянием магнитного поля на MPЭ. Как видно из рис. 4, значение MPЭ нелинейно (быстрее, чем  $\xi\sim H^2$ ) увеличивается с ростом H. Магниторефрактивный эффект в относительно небольшом поле  $100\,$  Э достигает 0.1%, что соответствует половине максимального значения  $\xi(\nu)_{\rm max}$ , наблюдаемого в поле  $2200\,$  Э.

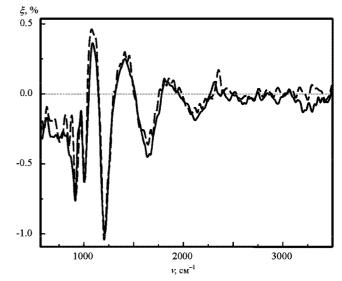
На рис. 5 приведены результаты измерений дисперсии магниторефрактивного эффекта и оптического отражения для ряда нанокомпозитов  $(\text{Co}_{45}\,\text{Fe}_{45}\,\text{Zr}_{10})_x\,(\text{SiO}_{1.7})_{100-x}\,$  (аморфный ферромагнетик — аморфная матрица). Спектры соответствуют p-компоненте линейно поляризованного света, в магнитном поле H=1700 Э, при угле падения излучения  $\varphi=8^\circ$ .

Измерения показали, что для образцов 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 2500-7000 см $^{-1}$ . В диапазоне 2500-1500 см $^{-1}$ отмечается незначительное уменьшение  $R(\nu)$  для образцов с концентрациями менее 47 ат.%, и затем в интервале частот 1400-1100 см $^{-1}$  наблюдается резкое уменьшение R(
u) с последующим  $(\nu < 1100~{\rm cm}^{-1})$  возрастанием коэффициента отражения, что связано с поглощением в матрице окиси кремния. Минимальные значения  $R(\nu)$  приходятся на образцы из диапазона концентраций 34-47 ат.%, находящиеся вблизи порога перколяции, определяемого по данным концентрационных зависимостей удельного сопротивления и магнитосопротивления [24], а также по данным ЭЭК [33] и соответствующего  $x_{\rm perc} \approx 43$  ат.%. 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 частот  $1250 \pm 200 \,$  см $^{-1}$ , в котором коэффициент отражения изменяется более чем в три раза.

В образцах с большим содержанием металлической фазы (x=57 ат.%) МС мало ( $\Delta \rho/\rho \approx 0.2\%$ ); МРЭ также мал и не превосходит 0.03%. Это согласуется с теорией [5], где показано, что малые значения МС коррелируют с незначительными величинами МРЭ, и, наоборот, большим значениям МС, как это имеет место в образцах с x<47 ат.%, соответствуют большие магниторефрактивные эффекты. Кроме того, в соответствии с выражениями (1) и (2)

в образцах с меньшими значениями коэффициентов отражения также должны наблюдаться большие MPЭ. Об этом свидетельствует эксперимент (рис. 5), из которого следует, что максимальное значение MPЭ при  $\nu \approx 1200$  см $^{-1}$  совпадает с минимальными коэффициентами отражения при этом же значении волнового числа.

Несмотря на наблюдаемую корреляцию между магнитосопротивлением и магниторефрактивным эффектом, небольшие значения МРЭ для системы, состоящей из аморфного ферромагнитного сплава (CoFeZr) в диэлектрической матрице  $SiO_2$ , требуют дополнительных доказательств того, что наблюдаемый эффект действительно является новым и не связан с традиционными МО эффектами. В работе [5, рис. 4] мы показали, что дисперсия МРЭ и на p-волне линейно поляризованного света и естественного света не зависят от поляризации излучения, продемонстрировав тем самым, что этот эффект не связан с нечетными МО эффектами, т.е. МРЭ является самостоятельным эффектом. Дополнительным подтверждением этого факта является изучение дисперсии МРЭ в поляризованном излучении при различных ориентациях внешнего магнитного поля (и вектора намагниченности) по отношению к плоскости поляризованного света: первая ситуация вектор Н || М и электрический вектор световой волны  $\mathbf{E} \perp \mathbf{M}$  (геометрия экваториального намагничивания — геометрия 99K) и вторая —  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{M}$ и  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{M}$  (геометрия наблюдения меридионального эффекта Керра). На рис. 6 приведены результаты измерений дисперсии МРЭ для нанокомпозита  $Co_{50.3}Al_{20.4}O_{29.3}$  с большим магнитосопротивлением  $\Delta 
ho/
ho = 9.2\%$ . Видно, что спектры MPЭ в экваториальной и меридиональной геометриях совпадают, в то время как в геометрии классического меридионального эффекта Керра не должно было бы



Puc.~6.~ Дисперсия MPЭ нанокомпозита Co  $_{50.3}$  Al  $_{20.4}$  O  $_{29.3}$  на p-компоненте линейно поляризованного света при экваториальном (штрих-пунктир;  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{M},~\mathbf{E} \perp \mathbf{M}$ ) и меридиональном (сплошная линия;  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{M},~\mathbf{E} \parallel \mathbf{M}$ ) намагничивании образца;  $\varphi = 45^\circ$ 

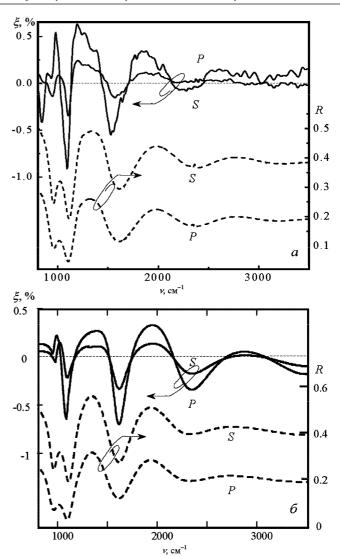
наблюдаться каких-либо изменений интенсивности отраженного излучения — анализатор в эксперименте отсутствует. Аналогичные результаты получены и на других образцах. Учет влияния четного ориентационного МО эффекта, как недавно показано в [21], также не приводит к ощутимым вкладам в МРЭ, особенно при углах падения света, далеких от угла Брюстера, как в нашем случае. Таким образом, заключаем, что наблюдаемый эффект — магниторефрактивный.

# б) Поляризационная и угловая зависимости магниторефрактивного эффекта и оптического отражения

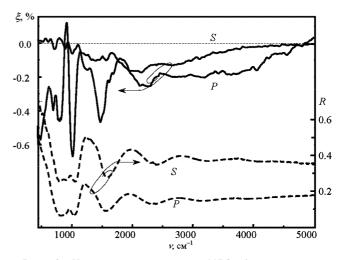
На рис. 7, a представлены спектры частотной зависимости MPЭ и оптического отражения нанокомпозита  $\mathrm{Co}_{51.5}\,\mathrm{Al}_{19.5}\,\mathrm{O}_{29}\,$  для p- и s-компонент линейно поляризованного света, в магнитном поле H=1600 Э, для угла падения света  $\varphi=45^\circ$ . Наибольшие значения эффектов наблюдаются на частоте  $\nu\sim1100\,$  см $^{-1}$  и составляют  $\xi_p=-0.9\%$ ,  $\xi_s=-0.35\%$ , а разница MPЭ  $|\xi_p-\xi_s|\sim0.55\%$ , тогда как значения коэффициентов отражения равны  $R_p\sim0.05,\ R_s\sim0.2$ , т.е. меньшему коэффициенту отражения соответствует больший магниторефрактивный эффект.

Резкие различия эффектов (особенно спектров MPЭ) на p- и s-компонентах линейно поляризованного света наблюдались для образцов, содержащих гранулы кобальта в матрице оксида титана. В нанокомпозите  $Co_{50.2}$   $Ti_{9.1}$   $O_{40.7}$  (рис. 8) величина  $|\xi_p - \xi_s|$ составляет 0.6% на частоте  $1000~{\rm cm}^{-1}$ . Такие же большие различия эффектов на p- и s-компонентах наблюдаются в нанокомпозитах кобальта, содержащих гранулы в матрице окиси кремния; например в образце  $\mathrm{Co}_{52.3}\,\mathrm{Si}_{12.2}\,\mathrm{O}_{35.5}\,\,\,|\xi_p-\xi_s|\,\sim\,0.6\,\%$  для  $\varphi = 45^{\circ}$  в области частот 1300-1600 см $^{-1}$ . Характер спектров MPЭ этого образца на p- (рис. 9) и s-компонентах существенно отличается от спектров всех других исследованных нами образцов. А именно знак  $\xi_p$ -эффекта во всем спектральном диапазоне положительный, тогда как магнитосопротивление этого образца отрицательное ( $\Delta \rho/\rho = -4.1\%$ ), как и в других нанокомпозитах. Кроме того, в этом образце, в отличие от других нанокомпозитов, обнаружены большие положительные величины МРЭ в области близкого ИК излучения  $\xi_p \sim 0.3\%$  при  $\nu\sim 4000~{\rm cm}^{-1}$  и  $\xi_p\sim 0.35\%$  при  $\nu\sim 5300~{\rm cm}^{-1}$ , тогда как  $\xi_s\sim -0.1\%$  практически во всем спектральном диапазоне.

Изучение зависимостей MPЭ от угла падения показало, что абсолютные значения  $\xi$ -эффекта на p-компоненте во всем ИК диапазоне несколько выше, чем на s-компоненте, и при переходе к большим углам падения света  $\xi_p$  практически не меняется, тогда как  $\xi_s$  уменьшается (на рис. 10 приведены спектры частотной зависимости MPЭ для p- и s-волн образца  $Co_{50.3}$   $Al_{20.4}$   $O_{29.3}$  для  $\varphi = 8$  и  $45^\circ$ ).



*Рис.* 7. Дисперсия МРЭ (сплошная линия) и коэффициента отражения R (пунктир) нанокомпозита  ${\rm Co}_{51.5}\,{\rm Al}_{19.5}\,{\rm O}_{29}$  для s- и p-поляризованного света;  $H=1600\,$  Э;  $\varphi=45^\circ$ ; (a) — эксперимент,  $(\delta)$  — теоретический расчет



Puc.~8.~ Частотная зависимость MPЭ (сплошные линии) и коэффициента отражения (пунктир) нанокомпозита  ${\rm Co}_{\,50.2}\,{
m Ti}_{\,9.1}\,{
m O}_{\,40.7}~$  для s- и p-поляризованного света;  $\varphi=45^\circ$ 

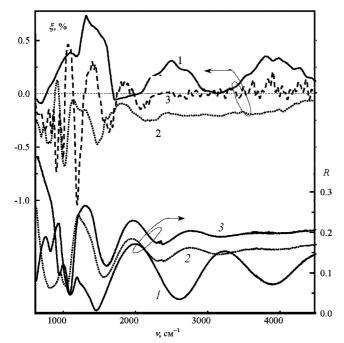
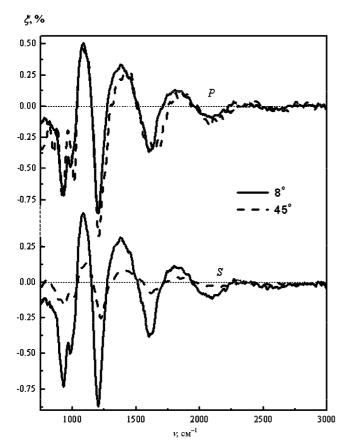


Рис.9.ДисперсияMPЭиRдляp-поляризованногосветананокомпозитовCo  $_{52.3}$  Si  $_{12.2}$  O  $_{35.5}$ (I),Co  $_{50.2}$  Ti  $_{9.1}$  O  $_{40.7}$ (2),Co  $_{50.3}$  Al  $_{20.4}$  O  $_{29.3}$ (3);  $\varphi = 45^{\circ}$ 



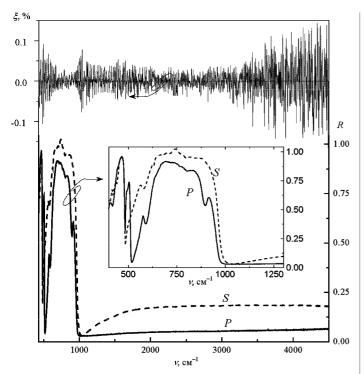
Pис. 10. Частотная зависимость MPЭ нанокомпозита Co  $_{50.3}$  Al  $_{20.4}$  O  $_{29.3}$  для p- и s-компонент линейно поляризованного света при двух углах падения света  $\varphi=8$  и  $45^{\circ}$  ; H=1600 Э

Расчеты, проведенные в рамках модели высокочастотного спин-зависимого туннелирования [21] спектров поляризационной и угловой зависимостей МРЭ этого ферромагнетика и ряда других нанокомпозитов металл-диэлектрик, подтверждают такое поведение  $\xi_{s,p}(\varphi,\nu)$  и показывают, что в области малых углов падения света (как в нашем случае до 45°) МРЭ и на s-, и на p-волнах слабо зависит от  $\varphi$ . При увеличении угла падения  $\xi_p$ -эффект должен нарастать и достигать больших (порядка десяти процентов) значений в районе угла Брюстера.

Представленные в этом разделе экспериментальные данные показывают, что, во-первых, спектры оптического отражения и МРЭ нанокомпозитов существенно различаются для p- и s-компоненты линейно поляризованного света. Во-вторых, характер дисперсии МРЭ в нанокомпозитах, содержащих ферромагнетик одинаковой концентрации в различных диэлектрических матрицах, существенно различен. Наиболее сильно это проявляется в области локализации оптических фононных мод диэлектрика.

Обнаружение в узком диапазоне длин волн в окрестности  $\lambda=9$  мкм при угле падения  $arphi=65^\circ$ p-поляризованного света значительного магнитоиндуцированного изменения оптических свойств  $Al_2O_3$  [15], которое авторы называют также MPЭ, требует отдельного анализа. Следует заметить, что указанные условия наблюдения ( $\lambda=9$  мкм,  $\varphi=65^\circ$ ) соответствуют весьма малому отражению. Поэтому из-за больших флуктуаций более правомерным было бы измерять разность  $\Delta R$ , а не параметр MPЭ. Мы выполнили измерения и  $\xi$ , и  $\Delta R$  для монокристаллического Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> во всем исследуемом спектральном диапазоне в полях до 1.6 кЭ и для углов падения света  $8 \div 45^{\circ}$  и не нашли в пределах погрешности измерений изменений в спектральных зависимостях коэффициента отражения света  $R(\nu)$ при намагничивании образца (рис. 11). Сигнал МРЭ из шумов практически не выделяется. Отсюда можно с уверенностью заключить, что в наших условиях эксперимента ( $\varphi=45^{\circ}$ , на p- и s-компонентах,  $H=1.6~\mathrm{k}$ Э) диэлектрическая матрица  $\mathrm{Al_2O_3}$  не дает вклада в измеряемый сигнал МРЭ. Весь комплекс данных показывает, что материал кристаллической диэлектрической матрицы ( $Al_2O_3$ ,  $SiO_2$ ,  $TlO_2$ ) влияет на оптические параметры нанокомпозита и туннельное МС, косвенно изменяя и МРЭ. Также можно ожидать, что растворенные в матрице примеси или наличие локализованных состояний могут привести к усилению МС и соответственно к возрастанию МРЭ, однако таких эффектов нами выявлено не было.

Можно добавить, что в соответствии с нашими экспериментальными данными по оптическому отражению, и особенно по МРЭ, в нанокомпозитах семейства CoAlO положение и спектральная ширина особенностей существенно зависят от многих

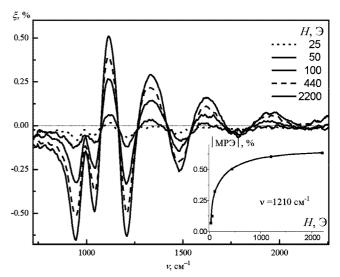


Puc. 11. Дисперсия коэффициента отражения  $R(\nu)$  и MPЭ (шумы установки)  ${\rm Al}_2\,{\rm O}_3$  для s- и p-компонент (сплошная линия) линейно поляризованного света;  $\varphi=45^{\circ}$ . На вставке — детальная спектрограмма коэффициентов отражения в области локализации продольных фононных мод

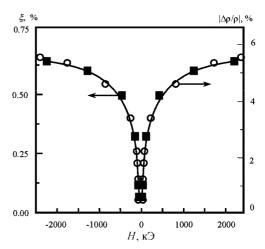
причин, например структуры диэлектрика, толщины пленки, технологических условий, от небольших изменений компонентного состава и т. д.

# в) Влияние магнитного поля на магниторефрактивные эффекты в нанокомпозитах

Влияние магнитного поля на отражательную способность гранулированных диэлектрических пленок для одного из образцов семейства CoAlO показано на рис. 12. Изополевые спектры  $\xi(\nu)$  для p-компоненты линейно поляризованного света получены в диапазоне частот 750-2200 см $^{-1}$  при угле падения, близком к нормальному. Максимальные значения эффекта, т. е. значения  $\xi(\nu) \geqslant 0.6\%$  для образца, достигшего состояния технического магнитного насыщения, наблюдаются при H > 1300 Э. Зависимость  $\xi(H)$ , как видно из вставки к рисунку, носит нелинейный характер. Аналогичное поведение спектров  $\xi(\nu, H)$ наблюдается на s-компоненте линейно поляризованного света и не только в нанокомпозитах на основе матрицы оксида алюминия, но и в других системах [14]. Рис. 13 демонстрирует хорошее совпадение кривых полевой зависимости МРЭ и ТМС для образца  $Co_{46}Al_{22}O_{32}$ . Видно, что оба эффекта являются четными функциями магнитного поля. Подобная корреляция в нанокомпозите  $Co_{43}\,Al_{22}\,O_{35}$ , но для угла падения света  $\varphi = 50^\circ$  отмечалась в [11] и еще раньше для гранулированной пленки металл-металл Со-Ад, но в случае МРЭ на проходящем излучении [34].

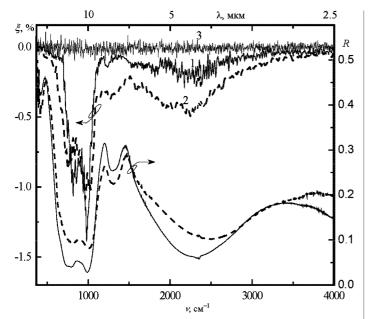


Puc.~12.~ Частотная зависимость магниторефрактивного эффекта нанокомпозита  ${
m Co}_{46}\,{
m Al}_{\,22}\,{
m O}_{32}\,$  для ряда значений магнитного поля H ,  ${
m Э};~\varphi=8^{\circ}$ 

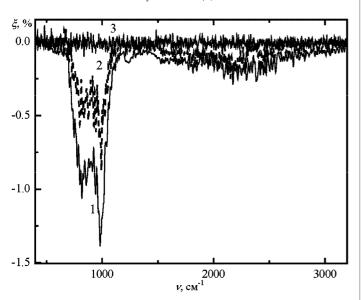


*Рис. 13.* Полевые зависимости магниторефрактивного эффекта ■ ( $\varphi=10^\circ$ ;  $\nu=1210$  см $^{-1}$ ) и магнитосопротивления  $\bigcirc$  [13] нанокомпозита Со  $_{46}$  Al  $_{22}$  O  $_{32}$ 

Наиболее ярким и показательным примером влияния магнитного поля на оптические свойства низкоразмерного ферромагнетика являются магнитооптические исследования нанокомпозита с туннельным характером проводимости  $(Co_{0.4}Fe_{0.6})_{48}(MgF)_{52}$ , имеющим магнитосопротивление  $\sim 13\,\%$  при комнатной температуре, в поле 10 кЭ [12]. В этом соединении в интервале частот  $500-1200 \text{ см}^{-1}$ , где коэффициент отражения имеет минимальные значения (< 5%), MPЭ оказывается аномально большим, достигая при нормальном падении  $\sim 1.5\%$  (рис. 14), что на два порядка больше традиционных МО эффектов в инфракрасной области спектра. Такое значение эффекта, превышающее МРЭ во всех ранее исследовавшихся металлических и неметаллических системах, можно считать рекордным, и мы назвали его гигантским магнитооптическим эффектом [14]. Говоря о достоверности приведенных на этом рисунке данных по зависимости  $\xi(\nu)$  для двух углов падения света и данных по зависимости  $\xi(
u)$  для двух значений магнитного поля (рис. 15), демонст-



Puc. 14. Дисперсия MPЭ (1, 2) (H=1700 Э) и коэффициента отражения  $R_{H=0}$  нанокомпозита ( $Co_{0.4}$  Fe $_{0.6}$ ) $_{48}$  (Mg $_{52}$  F) для углов падения  $\varphi=45^\circ$  (пунктирная линия),  $\varphi=8^\circ$  (сплошная линия) и «шума» установки (3)

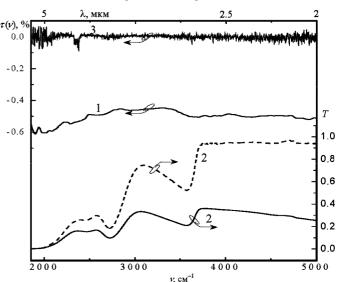


Puc. 15. Дисперсия MPЭ нанокомпозита (Co $_{0.4}$  Fe $_{0.6}$ ) $_{48}$  (Mg-F) $_{52}$  в поле H=1700 Э (1) (сплошная линия) и H=1500 Э (2) (пунктирная линия) и «шума» установки (3);  $\varphi=8^\circ$ 

рирующих нелинейную зависимость MPЭ от поля, особо подчеркнем, что уровень шумов (кривая 3 на рис. 14, 15) не превышает  $10^{-3}$ , а представляемые на рисунках значения эффекта получены усреднением данных из 1000 отдельных сканов. По нашим представлениям, наблюдаемое резонансное усиление эффекта связано с уменьшением коэффициента отражения, что на качественном уровне описывается соотношением (1) [22]. Однако природа резонансного характера спектра MPЭ в окрестности 10 мкм остается неясной.

Большие МРЭ мы наблюдали в проходящем свете ИК диапазона длин волн в тонкопленочных

образцах нанокомпозитов  $(Co_{0.4} Fe_{0.6})_{48} (MgF)_{52}$ ,  $Co_{52.3}Si_{12.2}O_{35.5}$  и  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(SiO_{1.7})_{100-x}$ , синтезированных на прозрачных в области длин волн 2-5 мкм подложках. На рис. 16 приведены спектры частотной зависимости МРЭ в проходящем излучении (МПЭ)  $\tau(\nu)$  и коэффициентов пропускания  $T(\nu)$  нанокомпозита  $({\rm Co}_{0.4}{\rm Fe}_{0.6})_{48}({\rm MgF})_{52}$ и подложки Corning Glass. На спектре частотной зависимости пропускания  $T(\nu)$  этого нанокомпозита наблюдается ряд особенностей, связанных, по-видимому, с оптическими свойствами подложки, но в целом во всем спектральном диапазоне частот 2000-5000 см $^{-1}$  МПЭ достигает 0.6%. Наблюдаемые увеличения МПЭ на краях спектрального интервала связаны с возрастанием поглощения в нанокомпозите на краях спектра.



Puc. 16. Дисперсия МПЭ (1) (Co $_{0.4}$  Fe $_{0.6}$ ) $_{48}$  (MgF) $_{52}$ , коэффициентов пропускания T (2) подложки (пунктирная линия) и образца (Co $_{0.4}$  Fe $_{0.6}$ ) $_{48}$  (MgF) $_{52}$  (сплошная);  $\varphi=0^\circ$  и «шума» установки (3)

Представленные выше экспериментальные результаты, касающиеся влияния магнитного поля на оптические свойства нанокомпозитов, показали, что: 1) МРЭ связан с туннельным магнитосопротивлением; 2) МРЭ в нанокомпозитах не является следствием каких-либо других причин, как-то: четных и нечетных МО эффектов или влияния магнитного поля на оптические свойства диэлектрической матрицы; 3) полное соответствие экспериментальных данных по полевой зависимости  $\xi(H)$  и  $\Delta \rho/\rho \sim f(H)$  подтверждает правильность соотношений, описывающих изменения коэффициента отражения, пропускания и поглощения излучения нанокомпозитами при приложении магнитного поля.

Обнаруженный гигантский магниторефрактивный эффект открывает новые возможности как для изучения спин-зависящего высокочастотного туннелирования, так и для поиска новых композиций в системе сплавов с гранулами ферромагнетика СоFе (или другого ферромагнитного металла) в матрице MgF для практического использования таких нано-

композитов в магнитооптике инфракрасного диапазона длин волн.

# д) Теоретическое описание частотной, угловой и поляризационной зависимостей магниторефрактивного эффекта

Весь комплекс экспериментальных данных, полученных в результате изучения частотной, поляризационной, угловой и полевой зависимостей магниторефрактивного эффекта и оптического отражения в нанокомпозитах, может быть объяснен в рамках развиваемой в [5, 19, 21] теории МРЭ для многослойных структур, состоящих из ферромагнитной пленки и граничащих с ней немагнитных слоев (в частности, подложки).

Рассмотрим четырехслойную систему, состоящую из пленки нанокомпозита (толщина ферромагнитной пленки  $d_2$  и комплексный показатель преломления  $\eta_2=n_2^0-ik_2^0$ , индекс 0 указывает на размагниченное состояние ферромагнитной пленки), напыленной на подложку  $(d_3,\ \eta_3=n_3-ik_3)$  и находящуюся в вакууме  $(n_{1,4}=1,\ k_{1,4}=0)$ . Известно, что коэффициенты отражения r и пропускания t для p-и s-поляризованных волн на границе раздела j-й и k-й сред многослойной системы с комплексными показателями преломления  $\eta_j$  и  $\eta_k$  записываются в виде [35]

$$r_{jk}^{p} = \frac{g_{j}\eta_{k}^{2} - g_{k}\eta_{j}^{2}}{g_{j}\eta_{k}^{2} + g_{k}\eta_{j}^{2}}, \quad r_{jk}^{s} = \frac{g_{j} - g_{k}}{g_{j} + g_{k}},$$

$$t_{jk}^{p} = \frac{2g_{j}\eta_{k}\eta_{j}}{g_{j}\eta_{k}^{2} + g_{k}\eta_{i}^{2}}, \quad t_{jk}^{s} = \frac{2g_{j}}{g_{j} + g_{k}},$$
(6)

где параметр  $g_i$  в формулах (6) определен выражением

$$g_{j(k)} = \sqrt{\eta_{j(k)}^2 - \eta_1^2 \sin^2 \varphi_0}.$$

Для коэффициентов отражения  $R^{p(s)}$  и пропускания  $T^{p(s)}$  четырехслойной системы имеют место следующие рекуррентные формулы:

$$\begin{split} R^{p(s)} &= \left| r_{jklm}^{p(s)} \right|^2, \qquad T^{p(s)} &= \left| t_{jklm}^{p(s)} \right|^2, \\ r_{jklm}^{p(s)} &= \frac{r_{jk}^{p(s)} + F_k^2 r_{klm}^{p(s)}}{1 + F_k^2 r_{jk}^{p(s)} r_{klm}^{p(s)}}, \quad t_{jklm}^{p(s)} &= \frac{t_{jk}^{p(s)} t_{klm}^{p(s)} F_k}{1 + F_k^2 r_{jk}^{p(s)} r_{klm}^{p(s)}}, \\ r_{jkl}^{p(s)} &= \frac{r_{jk}^{p(s)} + F_k^2 r_{jk}^{p(s)} r_{kl}^{p(s)}}{1 + F_k^2 r_{jk}^{p(s)} r_{kl}^{p(s)}}, \quad t_{jkl}^{p(s)} &= \frac{t_{jk}^{p(s)} t_{kl}^{p(s)} F_k}{1 + F_k^2 r_{jk}^{p(s)} r_{kl}^{p(s)}}, \end{split}$$

$$F_k = \exp(-2\pi i \nu g_k d_k), \tag{7}$$

где j,k,l,m — номера сред;  $F_k$  — фазовый множитель, определяющий набег фазы волны в k-м слое, т.е.  $F_k$  — это параметр, ответственный за интерференцию и затухание излучения в k-м слое.

Как следует из теории МРЭ, величины показателя преломления  $n_2$  и коэффициента экстинкции  $k_2$ 

пленки нанокомпозита при намагничивании образца записываются в виде [5]

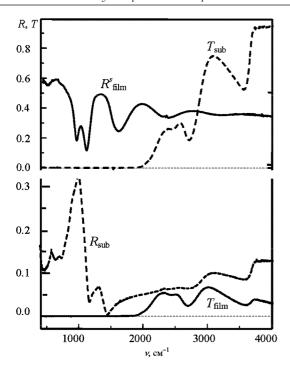
$$n_{2} = n_{2}^{0} \left( 1 + \frac{\Delta \rho}{\rho} \frac{\left(k_{2}^{0}\right)^{2}}{\left(k_{2}^{0}\right)^{2} + \left(n_{2}^{0}\right)^{2}} \right),$$

$$k_{2} = k_{2}^{0} \left( 1 + \frac{\Delta \rho}{\rho} \frac{\left(n_{2}^{0}\right)^{2}}{\left(k_{2}^{0}\right)^{2} + \left(n_{2}^{0}\right)^{2}} \right),$$
(8)

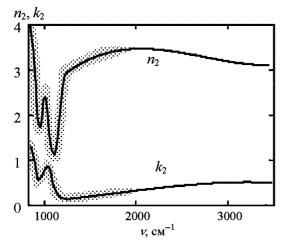
где  $\Delta \rho/\rho$  — абсолютное значение MC, соответствующее магнитному полю H. Выражения (6) и (7) совместно с формулами для показателей преломления пленки (8) полностью определяют MPЭ и оптическое отражение нанокомпозита в зависимости от различных параметров среды и внешних параметров: оптических постоянных сред, толщины слоев, направления векторов намагниченности и величины магнитного поля, поляризации падающего излучения и его угла падения, от частоты излучения. Они полностью учитывают эффекты затухания и интерференции света в составляющих слоях многослойной гранулированной наноструктуры.

Для определения оптических параметров нанокомпозита  $Co_{51.5}Al_{19.5}O_{29}$  мы провели измерения спектров пропускания  $T(\nu)$  ( $\varphi=0^{\circ}$ ), отражения на s-компоненте поляризованного света  $R^s(
u)$  ( $arphi=20^\circ$ ) ферромагнитного образца, а также спектров  $T(\nu)$  и  $R(\nu)$  стеклянной подложки (Corning glass) (рис. 17), на которой был синтезирован данный нанокомпозит. Путем решения обратной задачи определялись показатели преломления  $n_i$ ,  $k_i$  образца и подложки. Подложка в области 3000-6000 см  $^{-1}$  имеет небольшой коэффициент экстинкции  $k_3\sim 10^{-4}-10^{-5}$  при показателе преломления  $n_3$ , изменяющемся в пределах от 1.5 до 1.3. В области частот ниже  $2000~{
m cm}^{-1}$  показатель поглощения подложки существенно возрастает, что не позволило точно определить оптические постоянные в этой области спектра. Центр полосы поглощения матрицы  ${\rm Al}_2{\rm O}_3$  в нанокомпозите  ${\rm Co}_{51.5}{\rm Al}_{19.5}{\rm O}_{29}$  приходится на  $\nu\sim 1025$  см $^{-1}$ . В чистом образце  $\hat{\rm Al}_2{
m O}_3$ , по данным [26, 27], эта полоса смещена в низкочастотную область до  $950 \text{ см}^{-1}$ . На рис. 18приведена дисперсия показателя преломления  $n_2$ и коэффициента экстинкции  $k_2$  рассматриваемого нанокомпозита. Штриховкой изображен разброс возможных значений показателей преломления, получаемых в расчетах при учете погрешностей экспериментально определяемых коэффициентов отражения и прохождения.

Определенные экспериментально оптические параметры и значения MC использовались для расчета  $MP\mathfrak{I}$  по формулам (6)–(8). Результаты расчетов представлены на рис. 7, 6. Данные, получаемые в расчетах, хорошо коррелируют с экспериментальными (рис. 7, a) и по структуре, и по величине значений  $\xi(\nu)$  и  $R(\nu)$ . Как в спектрах  $R(\nu)$ , так и  $\xi(\nu)$  наблюдаются осцилляции этих эффектов с периодично-



Puc.~17.~ Частотная зависимость коэффициентов пропускания и отражения подложки —  $T_{
m sub},~R_{
m sub}^s$  (пунктир) и образца  ${
m Co}_{51.5}\,{
m Al}_{19.5}\,{
m O}_{29}-T_{
m film},~R_{
m film}^s$  (сплошная линия)



Puc. 18. Дисперсия показателя преломления  $n_2$  и коэффициента экстинкции  $k_2$  пленки нанокомпозита  $\operatorname{Co}_{51.5}\operatorname{Al}_{19.5}\operatorname{O}_{29}$ 

стью  $\sim 700\,$  см $^{-1}$ , обусловленные интерференцией; в районе полосы поглощения наблюдается резкая смена знака эффекта. В целом экспериментальные особенности хорошо описываются теорией.

### Заключение

Приведенные данные экспериментальных исследований нанокомпозитов гранулированный ферромагнитный метал-диэлектрик показывают, что в области перколяционного перехода для нанокомпозитов наблюдается не только большое магнитосопротивление, но и большие магнитоиндуцированные изменения коэффициентов отражения, прохождения и поглощения излучения ИК диапазона длин волн, которые можно отнести к новому магнитооптиче-

скому эффекту, получившего название магниторефрактивного эффекта. Магниторефрактивный эффект нанокомпозитов наиболее ярко выражен в тех областях спектра, где отражение минимально. В ряде нанокомпозитов МРЭ в таких областях частот выявляет резонансный характер, и тогда величина магниторефрактивного эффекта в области резонансов превосходит традиционные эффекты Керра в отраженном свете в десятки раз. Это указывает на иную, чем эффектов Керра (негиротропную) природу происхождения МРЭ.

Четкая корреляция между полевыми зависимостями магниторефрактивного эффекта и магнитосопротивления свидетельствует о том, что этот эффект связан с высокочастотным спин-зависимым туннелированием электронов проводимости. Модель МРЭ, базирующаяся на описании туннельного контакта между гранулами перколяционного кластера в виде параллельно соединенных емкости и туннельного сопротивления, при учете дисперсии оптических параметров ферромагнитной пленки нанокомпозита и подложки, а также процессов интерференции света позволяет на количественном уровне объяснить наблюдаемые закономерности и особенности экспериментов по частотной, угловой, поляризационной и полевой зависимостям МРЭ в гранулированных системах металл — диэлектрик Co-Al-O, Co-Ti-O, Co-Si-O, CoFeZr-SiO<sub>2</sub>, CoFe-MgF, Fe-SiO<sub>2</sub>.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант 03-02-16127).

Авторы выражают глубокую благодарность профессорам S. Ohnuma, Ю. Е. Калинину, Б. А. Аронзону, любезно предоставившим образцы для исследования нового магнитооптического эффекта. Мы благодарим профессора А. Б. Грановского за активное сотрудничество и плодотворные дискуссии.

#### Литература

- Krebs J.J., Lubitz P., Chaiken A., Prinz G.A. // J. Appl. Phys. 1991. 69, N 8. P. 4795.
- 2. Ринкевич А.Б., Ромашев Л.Н., Устинов В.В. // ЖЭТФ. 2000. **117**, №5. С. 960.
- 3. *Jacquet J.C., Valet T. //* Proc. «Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces». 1995. **384**. P. 477.
- 4. *Uran S., Grimsditch M., Fullerton E.E., Bader S.D.* // Phys. Rev. 1998. **57**. P. 2705.
- 5. Грановский А.Б., Быков И.В., Ганьшина Е.А. и др. // ЖЭТФ. 2003. **123**. С. 1256.
- 6. Кринчик Г.С. Физика магнитных явлений. М., 1985.
- 7. Кринчик Г.С., Гущин В.С. // ЖЭТФ. 1969. **56**. С. 183.
- 8. Кринчик Г.С., Нурмухамедов Г.М. // ЖЭТФ. 1965. **47**. С. 76.
- 9. Кринчик Г.С., Артемьев В.А. // ЖЭТФ. 1967. 53. С. 1901.
- 10. *Кринчик Г.С., Гущин В.С.* // Письма в ЖЭТФ. 1969. **10**. С. 35.
- 11. Быков И.В., Ганьшина Е.А., Грановский А.Б., Гущин В.С. // ФТТ. 2000. **42**. С. 487.

- Ohnuma S., Hono K., Abe E. et al. // J. Appl. Phys. 1997.
   N 11. P. 5646.
- 13. Kobayashi N., Ohnuma S., Masumoto T., Fujimori H. // J. Appl. Phys. 2001. **90**. C. 4159.
- 14. Грановский А., Гущин В., Быков И. и др. // ФТТ. 2003. **45**. С. 867.
- 15. *Кравец В.Г., Погорелый А.Н., Кравец А.Ф.* и др. // ФТТ. 2004. **45**. С. 1456.
- 16. *Кубраков Н.Ф., Звездин А.К., Звездин К.А.* и др. // ЖЭТФ. 1998. **114**. С. 1101.
- 17. Genkin G.M. // Phys. Lett. A. 1998. 241. P. 293.
- Uran S., Grimsditch M., Fullerton E., Bader S.D. // Phys. Rev. B. 1998. 57. P. 2705.
- 19. Грановский А., Кузмичев М., Клерк Ж.П. // ЖЭТФ. 1999. 116. С. 1762.
- 20. Kravets V.G., Bosec D., Matthew J.A.D. et al. // Phys. Rev. B. 2002. **65**. P. 054415.
- 21. Грановский А.Б., Инуе М., Клерк Ж.П., Юрасов А.Н. // ФТТ. 2004. **46**. С. 484.
- 22. Bykov I.V., Gan'shina E.A., Granovsky A.B. et al. // Proc. Euro-Asian Symposium «Trends in Magnetism», Krasnoyarsk, 24–27 August 2004. P. 335
- 23. Kobayashi N., Ohnuma S., Masumoto T., Fujimori H. // J. Magn. Soc. Japan. 1999. 23. P. 76.

- 24. *Стогней О.В., Калинин Ю.Е., Ситников А.В.* и др. // Физика металлов и металловедение. 2001. **91**. P. 24.
- 25. Аронзон Б.А., Варфоломеев А.Е., Ликальтер А.А. и др. // ФТТ. 1999. **41**. С. 944.
- Niklasson G.A., Granqvist C.G. // J. Appl. Phys. 1984. 55.
   P. 3382.
- 27. Bruesch P., Kotz R., Neff H., Pietronero L. // Phys. Rev. B. 1984. **29**. P. 4691.
- Schubert M., Tiwald T.E., Herzinger C.M. // Phys. Rev. B. 2000. 61. P. 8187.
- 29. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М., 1973.
- 30. Gan'shina E., Kumaritova R., Bogoroditsky A. et al. // Magn. Soc. Japan. 1999. 23. P. 379.
- Bensch W., Bergholz W. // Semicond. Sci. Technol. 1990. 5.
   P. 421.
- Maruyama T., Ohtani S. // Appl. Phys. Lett. 1994. 65.
   P. 1346.
- 33. *Буравцова В.Е., Ганьшина Е.А., Гущин В.С.* и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2003. **67**. С. 918.
- Gester M., Schlapka A., Pickford R.A. et al. // J. Appl. Phys. 1999. 85. P. 5045.
- 35. Маевский В.М. // ФММ. 1985. 59. С. 215.

Поступила в редакцию 16.11.04