

Fe-Ag 颗粒膜的光学与磁光尺寸效应*

王松有^{1)†} 巨晓华¹⁾ 李合印¹⁾ 许旭东¹⁾ 周 鹏¹⁾ 张荣君¹⁾ 杨月梅¹⁾ 周仕明²⁾ 陈良尧¹⁾

¹⁾ (复旦大学信息科学与工程学院光科学与工程系, 上海 200433)

²⁾ (复旦大学物理系, 上海 200433)

(2001 年 6 月 6 日收到, 2001 年 7 月 10 日收到修改稿)

采用离子束共溅射的方法分别制备了一系列 $\text{Fe}_x\text{Ag}_{1-x}$ ($x = 18, 45, 81$) 颗粒膜样品, 经 1h 真空退火, 通过 X 射线衍射和光学及磁光测量, 研究了它们在不同退火温度下的结构和磁光性质. 结果表明其磁光效应与颗粒尺寸密切相关.

关键词: 颗粒膜, 磁光效应, 尺寸效应

PACC: 7865E, 7820D, 7820L

1 引 言

近几年来, 由磁性元素和非磁性元素组成的纳米结构的复合材料引起了人们的极大兴趣, 许多实验已经证明这些材料表现出许多独特的性质, 尤其是在巨磁电阻方面. 由溅射方法生长的二元颗粒膜材料, 不仅具有微颗粒的性质, 而且具有薄膜的双重特性及其交互作用的效应. 早期人们对金属-绝缘体组成的颗粒膜材料如 Au-SiO_2 , Ag-SiO_2 等电学性质随金属颗粒尺寸的变化进行了广泛的研究, 发现这类材料存在尺寸效应. 除此以外, 对由贵金属-磁性金属组成的金属型颗粒膜的光学和磁学性质在理论和实验方面也进行了一定的研究. 由于其中的自由电子在颗粒内部以及颗粒之间的运动受到限制, 因此也存在尺寸效应. 以前的研究主要集中于以很小的磁性颗粒材料分散在金属衬底方面, 这些金属主要是 Au, Ag, Cu 等, 研究其在不同制备条件下的巨磁电阻性质^[1-4], 但对其磁光性质的研究^[5-7]则相对较少. 材料的输运性质与颗粒的大小、形状及分布有密切的关系, 因此研究制膜后的退火处理过程, 对寻找最优的颗粒膜性质十分重要. 本文将对 Fe-Ag 颗粒膜在不同退火条件下, 其光学和磁光性质随退火温度的变化进行研究, 并对实验结果进行理论解释.

2 实 验

采用离子束共溅射的方法分别制备了一系列 $\text{Fe}_x\text{Ag}_{1-x}$ ($x = 18, 45, 81$) 样品. 样品的成分利用扫描电子显微镜测量. 所制备的薄膜样品都有足够的厚度, 以克服由衬底引起的光学和磁光干涉效应的影响. 采用 X 射线衍射法测定了其结构. 室温光学常数和极向克尔参数分别用扫描型椭圆仪^[8]和克尔谱仪^[9]测量. 在测量中, 1T 的外加磁场垂直于膜面. 光学和磁光测量的光子能量范围均为 1.5—4.5eV.

3 结果与讨论

由 X 射线衍射可清楚地观察到在不同退火条件下的颗粒膜衍射峰的变化. 在未退火时, Fe 含量低 (x 小于 45) 情况下, 主要表现出 fcc 的 Ag(111) 峰, 该峰的线宽较宽, 是由于晶格缺陷等因素引起的. 随退火温度的升高, 出现了 Fe(110) 衍射峰, 且 Ag(111) 和 Fe(110) 衍射峰的位置随温度的升高而发生稍微移动. 峰的线宽变窄, 峰的强度都有所增强, 这表明晶面间距 d 和晶粒的大小都随退火温度而有所变化. 一般情况下, 随晶粒尺寸的增加, 两种颗粒本身的尺寸也随退火温度的升高而变大. 经高温退火后 Fe-Ag 颗粒膜结构具有 fcc 的 Ag 和 bcc 的 Fe 两相共存特征. 这与用磁控溅射方法制备的 $\text{Fe}_{35}\text{Ag}_{65}$ 颗粒膜的特征类似^[10].

* 国家自然科学基金 (批准号: 19975067) 及上海市科学技术委员会基金 (批准号: 005115027) 资助的课题.

† E-mail: songyouwang@fudan.edu.cn

图 1 给出不同退火条件下 Fe_xAg_{1-x} 的 Kerr 旋转角 θ_K 和椭偏率 ϵ_K 随光子能量的变化关系. 从图 1 可以看出, θ_K 和 ϵ_K 随 Fe 含量的增加而单调地增加. 对于 $x = 18$ 的样品, 在未退火时两者都很小, 且随能量单调地变化, 退火后, 在 θ_K 谱中分别在 2.0 和 4.0eV 附近出现了一个较宽的峰和一个很尖的峰, 而在 ϵ_K 谱中在低能端和 4.0eV 附近出现了较大的变化和一负的峰. 随退火温度的升高, 峰的高度增

加, 且峰的位置略向低能方向移动. 尽管对 $x = 45$ 和 81 两个样品也存在类似的现象, 但有较大的差别. 随 Fe 含量的增加, 峰的宽度变宽, 在椭偏率中由 Ag 引起的峰几乎消失. 对于 $x = 45$ 的样品, 对于低能端的峰, 退火温度为 200℃ 时达到最大值, 当退火温度继续升高时, 其峰值呈下降趋势. 另一较尖锐的峰出现在 3.85eV 附近, 其峰值 300℃ 达到最大, 退火温度再升高时几乎不再增加.

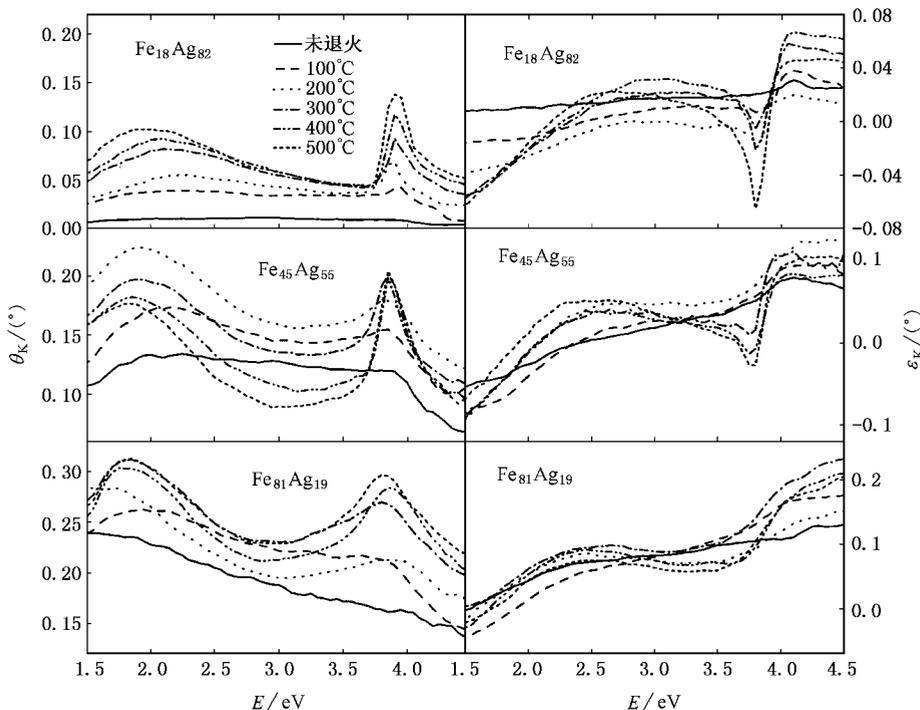


图 1 不同退火温度下 Kerr 角及椭偏率随能量的变化曲线

根据介电常量的测量值, 可以计算出能量损失谱 $Im(-1/\epsilon)$, 结果如图 2 所示. 在能量损失谱中的极大值位置对应的能量为屏蔽等离子共振吸收边. 对于 Fe-Ag 样品, 其对应的能量位置为 3.85eV 附近与 Ag 的能带结构中的带间跃迁的起始位置相关, 且随退火温度的升高, 等离子体吸收增强. 同时能量损失谱的峰值也向低能方向移动, 这一现象与在 Co-Ag, Ag-SiO₂ 等颗粒膜中观察到的现象相似^[7, 11], 这些都归因于 Ag 颗粒的光学尺寸效应.

磁光效应主要决定材料的介电张量的非对角元和对角元(或光学常数), 可由

$$\Phi_K = \theta_K - i\epsilon_K = \frac{\tilde{\epsilon}_{xy}}{\sqrt{\epsilon(\epsilon - 1)}} = \frac{(B - iA)\tilde{\epsilon}_{xy}}{(A^2 + B^2)}$$

表示. 根据测得的光学常数和磁光参数, 可以计算出与光学常数和介电张量非对角元相关的 $A(A^2 +$

$B^2)$, $B(A^2 + B^2)$, ϵ_{xy1} , ϵ_{xy2} 随能量的变化曲线, 结果示于图 3 和图 4. 由此可知, 在等离子体吸收边附近, 所有样品在 3.85eV 附近 $A(A^2 + B^2)$ 出现了一负的峰, 且该峰随退火温度的升高而增强, $B(A^2 + B^2)$ 在该处出现了一由负到正的振荡峰, 且正峰的幅值远大于负峰的幅值. 随退火温度的升高, 峰的高度增加趋缓. 随 Fe 含量的增加, 峰的宽度变宽. 另外, 对所有样品, 无论是在制备态还是经过退火, 在低能端两者都是单调变化的, 即没有出现任何增强峰. 而 ϵ_{xy} 随退火温度变化十分明显, 随退火温度的升高, 对 $x \leq 45$ 的样品, ϵ_{xy} 的实部和虚部的变化相同, 随退火温度的升高, ϵ_{xy1} 在 2.0eV 附近出现一负峰, 到 200℃ 时达到最大, 然后该峰的幅度随 T_A 增加而逐渐减小, 同时 ϵ_{xy2} 的绝对值在不断增加. 对于 $x = 81$

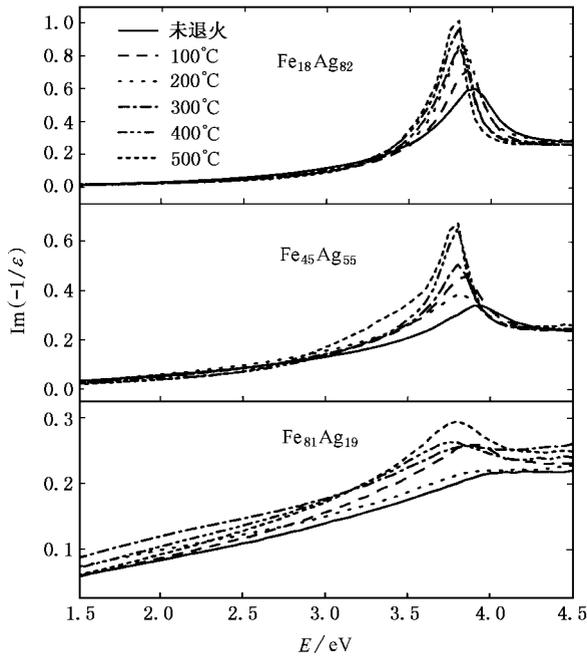


图2 不同退火温度下 FeAg 的体能量损失谱 $\text{Im}(-1/\epsilon)$

的样品与前两者有很明显的区别, ϵ_{xy1} 的峰值向低能端移动, 而 ϵ_{xy2} 在 2.0eV 附近出现了一较宽的正峰. 对所有样品在 4.0eV 附近 ϵ_{xy} 也存在一定结构, 但随 T_A 的变化不十分明显.

在 Fe-Ag 颗粒膜中, Fe 对等效非对角元 ϵ_{xy} 的变化具有直接贡献, 在 2.0eV 附近, $A/(A^2 + B^2)$, $B/(A^2 + B^2)$, ϵ_{xy1} 和 ϵ_{xy2} 都小于零, θ_K 在此出现的一增强峰主要来源于 Fe 颗粒的贡献. 而在 3.85eV 附近, $(A^2 + B^2)$ 达到最小值, $A\epsilon_{xy1} + B\epsilon_{xy2}$ 的值大于零, 从而在 3.85eV 附近出现一尖锐的峰, 主要受 Ag 等离子体吸收边的影响而产生的. 上述现象可从以下原因中获得解释: 由于在室温附近, 基本上可认为 Fe-Ag 颗粒不互溶, 即在未退火情况下, 两种元素材料以颗粒状呈无序分布, 这时 Fe 和 Ag 的颗粒都很小. 在低温退火时, 由于两种颗粒的不互溶性, 使得各自发生积聚, 颗粒体积增大, 随退火温度的继续升高, 无序分布的 Fe 颗粒不断从 Ag 基底中析出, 最终形成 bcc 的 Fe 和 fcc 的 Ag 两相混合体. 随结构的变化, 光学和磁光性质都发生相应的改变. 当 Ag 颗粒增大时, 由于光学尺寸效应, Ag 颗粒的等离子体吸收将增强(如图 2 所示), 所以在 3.85eV 附近出现的 θ_K 增强峰与等离子体吸收增强有关, 与在 Co-Ag 系列样品表现出的特征相同^[7]. 在退火过程中, Fe 的颗粒也将不断地增大, 使得 Fe 颗粒本身的磁光常数发生变化, 特别在 1.5—2.0 eV 范围内, 从而导致磁光效应的增加. 当颗粒尺寸随退火温度进一步增大时, 磁光效应却随之减小, 这来源于两个因素, 一方

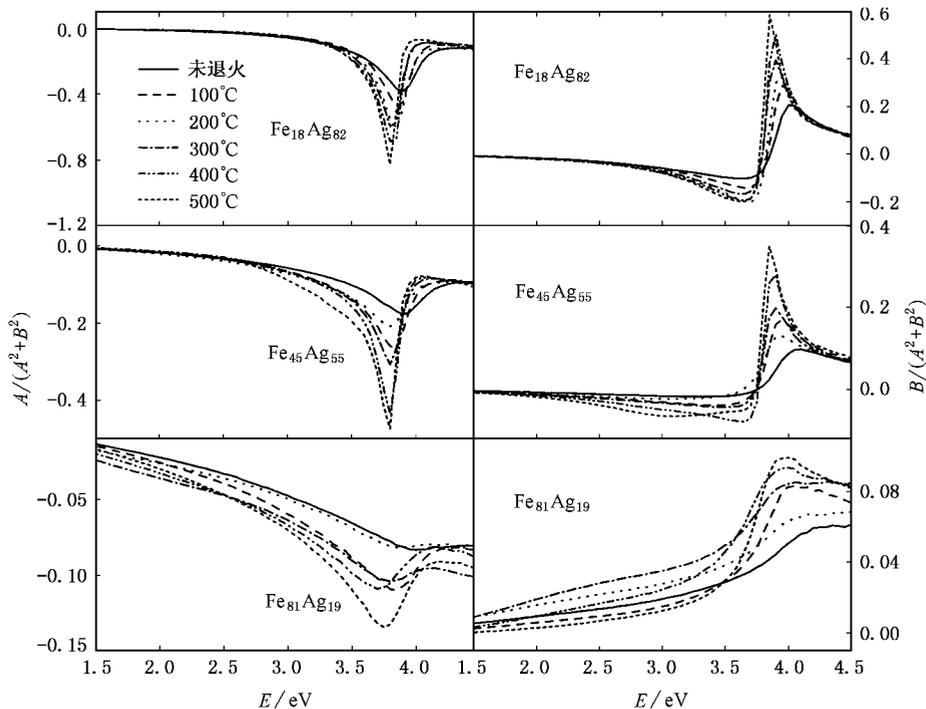
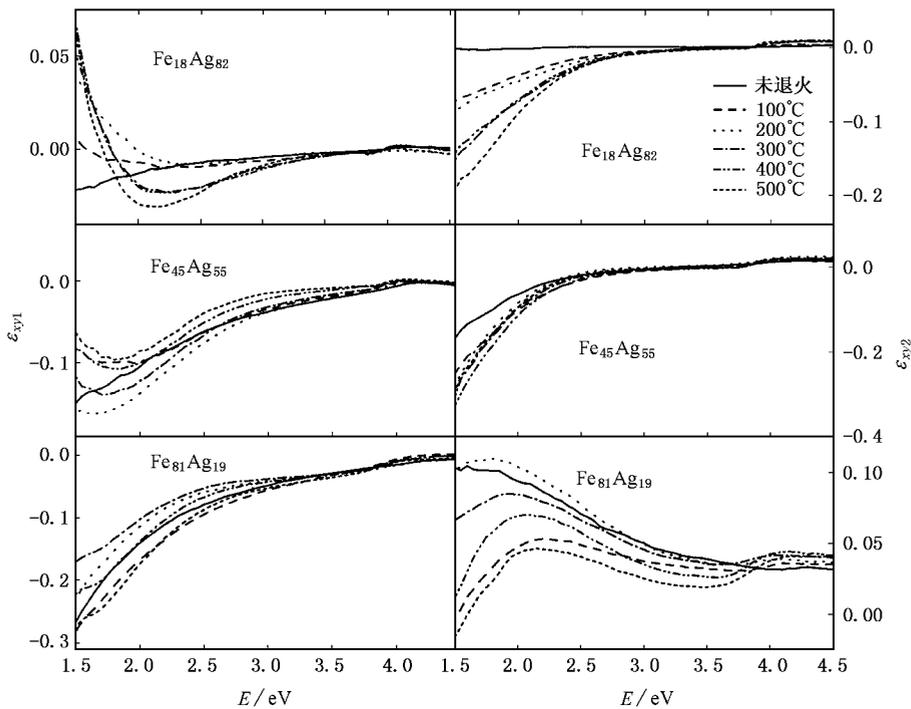


图3 计算的 $A/(A^2 + B^2)$, $B/(A^2 + B^2)$ 随能量的变化曲线

图 4 计算的 ϵ_{xy1} , ϵ_{xy2} 随能量的变化曲线

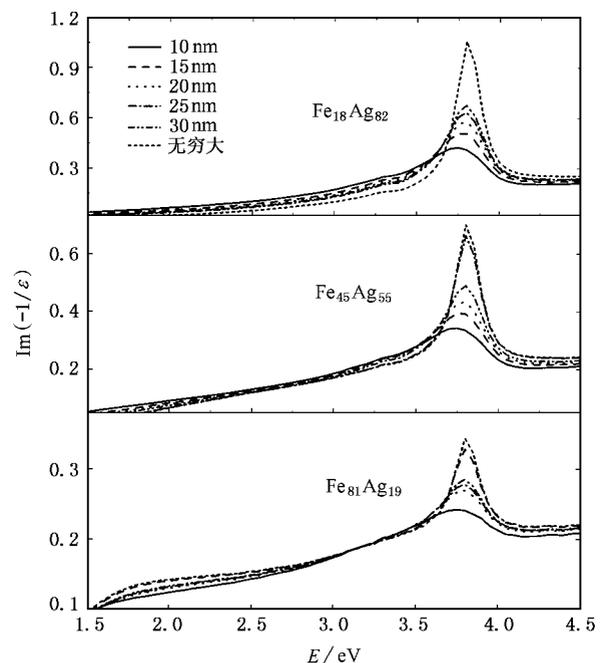
面随 Fe 颗粒尺寸的进一步增大,其磁光常数逐渐趋近于饱和;另一方面,在这个过程中,其比表面积以及由此引起的磁光效应将减小.在上述两个因素的共同作用下,颗粒膜的磁光效应将减小,但是在 3.85 eV 处,由于 Ag 的光学尺寸效应随退火温度的升高,其光学吸收及其对磁光效应的影响在不断地增加,从而导致其磁光效应随退火温度的升高而增强.

利用有效介质模型^[12],考虑到颗粒尺寸的变化^[13],可以很好地解释在高端端由 Ag 颗粒的尺寸变化而引起的磁光增强效应.图 5 和图 6 是仅考虑 Ag 颗粒尺寸变化时计算出的 $\text{Im}(-1/\epsilon)$ 和 $A(A^2 + B^2)$, $B(A^2 + B^2)$, 与实验结果符合较好,由此可以清楚地看出,在 Fe-Ag 颗粒膜中也存在光学尺寸效应.

4 结 论

通过对 $\text{Fe}_x\text{Ag}_{1-x}$ 颗粒膜在不同退火条件下的结构、光学和磁光性质进行的详细研究,发现 Fe-Ag 颗粒膜的光学和磁光效应的变化与颗粒尺寸的变化有密切的联系.随退火温度的升高,其结构的变化导致了光学和磁光性质也发生了相应的变化,在测量的能量范围内分别在 2.0 和 3.85 eV 附近出现了两个

磁光增强峰,分析表明,低能端的增强峰归因于磁性 Fe 颗粒的尺寸效应,来源于介电张量的非对角元的变化,而高能端的增强峰归因于 Ag 颗粒的尺寸效应.因此在 Fe-Ag 颗粒膜中同时具有光学和磁光的尺寸效应.

图 5 计算的能量损失谱 $\text{Im}(-1/\epsilon)$

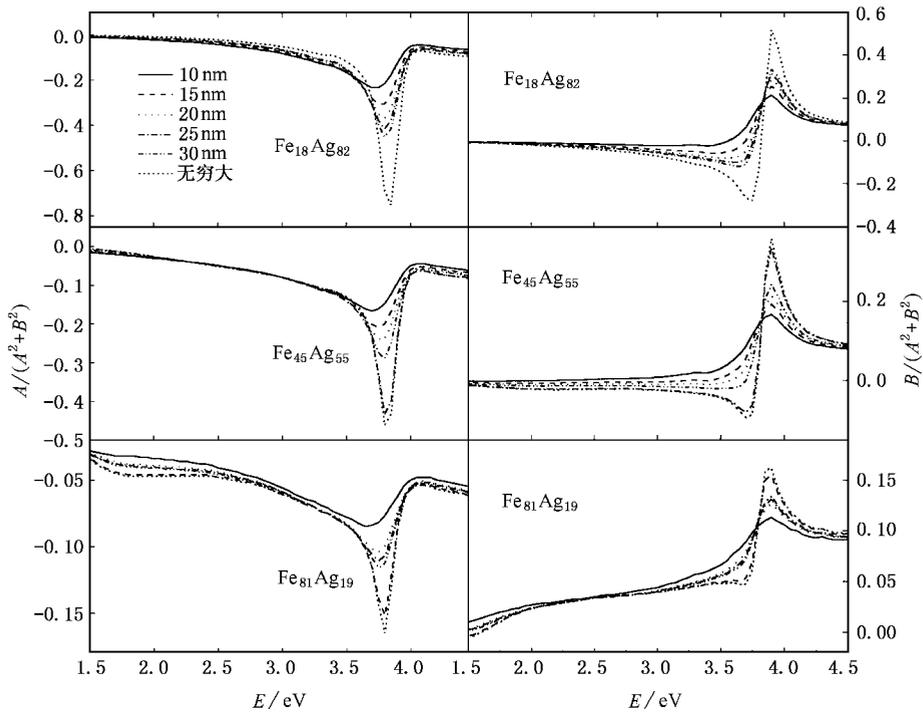


图6 计算的 $A/(A^2+B^2)$ 和 $B/(A^2+B^2)$

- [1] K. Sumiyama, S. A. Makhlof, S. Yamamuro, Y. F. Xu, T. J. Konno, K. Wakoh, T. Hihara, K. Suzuki, *J. Magn. Magn. Mater.*, **140**(1995), 563.
- [2] J. G. Na, C. T. Yu, X. G. Zhao, W. Y. Lai, H. L. Luo, J. G. Zhao, *J. Appl. Phys.*, **76**(1994), 6484.
- [3] C. T. Yu, Y. Yang, Y. Q. Zhou, S. X. Li, W. Y. Lai, Z. X. Wang, *J. Appl. Phys.*, **76**(1994), 6487.
- [4] J. P. Wang, H. L. Luo, N. F. Gao, Y. Y. Liu, *J. Mater. Sci.*, **31**(1996), 727.
- [5] H. B. Zhao, S. Y. Wang, Z. C. Shen, R. J. Zhang, H. Wang, L. Y. Chen, *Acta Phys. Sin.*, **48**(1999), S1 [in Chinese] [赵海斌, 王松有, 申作成, 张荣君, 王惠, 陈良尧, *物理学报*, **48**(1999), S1].
- [6] S. H. Deng, S. Y. Wang, J. Li, Z. Liu, Y. L. Chen, Y. M. Yang, L. Y. Chen, H. Liu, X. X. Zhang, D. Lynch, *Acta Phys. Sin.*, **50**(2001), 169 [in Chinese] [邓世虎, 王松有, 李晶, 刘铸, 陈岳立, 杨月梅, 陈良尧, 刘辉, 张西祥, D. Lynch, *物理学报*, **50**(2001), 169].
- [7] S. Y. Wang, W. M. Zheng, D. L. Qian, L. Y. Chen, *J. Appl. Phys.*, **85**(1999), 5121.
- [8] L. Y. Chen, X. W. Feng, Y. Su, H. Z. Ma, Y. H. Qian, *Appl. Opt.*, **33**(1994), 1299.
- [9] L. Y. Chen, S. M. Zhou, Y. X. Zheng, Y. Cheng, Y. Wang, Y. M. Yang, Y. H. Qian, C. H. Shang, Y. J. Wang, *Opt. Eng.*, **36**(1997), 3188.
- [10] Y. X. Zhang, S. H. Liou, K. W. Lee, C. P. Reed, A. Nazareth, *J. Appl. Phys.*, **69**(1991), 5273.
- [11] U. Kreibitz, L. Genzel, *Surf. Sci.*, **156**(1985), 678; R. Carey, D. M. Newman, B. W. J. Thomas, *Thin Solid Films*, **129**(1985), 231; R. Carey, B. W. J. Thomas, *J. Phys.*, **D8**(1975), 336.
- [12] M. Abe, M. Gomi, F. Shirasaki, T. Itoh, M. Hasegawa, H. Komoda, Proc. in the 6th International Conference on Ferrites (Japan, 1992), p. 1663.
- [13] L. Genzel, T. P. Martin, U. Kreibitz, *Z. Phys.*, **B21**(1975), 339.

THE SIZE EFFECT ON OPTICAL AND MAGNETO-OPTICAL PROPERTIES IN Fe-Ag GRANULAR FILMS^{*}

WANG SONG-YOU¹⁾ JU XIAO-HUA¹⁾ LI HE-YIN¹⁾ XU XU-DONG¹⁾ ZHOU PENG¹⁾

ZHANG RONG-JUN¹⁾ YANG YUE-MEI¹⁾ ZHOU SHI-MING²⁾ CHEN LIANG-YAO¹⁾

¹⁾*Department of Optical Science and Engineering, School of Information Science and Engineering, Fudan University, Shanghai 200433, China*

²⁾*Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China*

(Received 6 June 2001 ; revised manuscript received 10 July 2001)

ABSTRACT

A series of $\text{Fe}_x\text{Ag}_{1-x}$ ($x = 18, 45, 81$) samples were prepared by ion beam sputtering and post-annealed in vacuum at different temperatures for one hour. X-ray diffraction, optical and magneto-optical measurement were performed and the structure, optical and magneto-optical Kerr effect properties for different annealing temperatures have been studied. Results show that the magneto-optical Kerr effects are closely related to the particle size.

Keywords : granular films, magneto-optical effect, size effect

PACC : 7865E, 7820D, 7820L

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19975067) and the Foundation of the Science and Technology Committee of Shanghai, China (Grant No. 005115027).