

# Fe<sub>45</sub>Ag<sub>55</sub> 颗粒膜的磁光尺寸效应\*

赵海斌 王松有 申作成 张荣君 王 惠<sup>1)</sup> 陈良尧

(复旦大学物理系, 上海 200433)

1)(复旦大学材料科学系, 上海 200433)

(1999 年 6 月 10 日收到)

用离子束溅射方法制备了 Fe<sub>45</sub>Ag<sub>55</sub> 颗粒膜样品, 通过 X 射线衍射和磁性及磁光测量研究了它们在不同退火条件下的结构和磁性. 结果表明其磁光效应与颗粒尺寸密切相关.

PACC: 3260; 3345; 7920

## 1 引 言

自从在磁性颗粒膜中发现巨磁电阻效应(GMR)以来<sup>[1,2]</sup>, 人们对各种颗粒膜的磁性和输运性质进行了广泛的研究. 其研究兴趣来源于两个方面, 首先是材料的制备方法和后处理过程都十分简单, 在诸如磁场传感器和磁盘读出等领域具有潜在的应用价值, 其次是颗粒膜的 GMR 和磁性与薄膜的组成、颗粒大小、制备工艺条件及其后处理过程有很大的关系, 其中包含深刻的物理问题. 其实, 绝缘体-金属颗粒膜中的一些物理问题(如光学尺寸效应), 在二三十年前就已引起科学家的浓厚兴趣. 本文将报道采用离子束溅射方法制备的 Fe-Ag 颗粒膜, 在不同退火条件下对其磁性和磁光性质进行细致研究的结果.

## 2 实 验

样品是用离子束溅射方法制备的 Fe<sub>45</sub>Ag<sub>55</sub> 颗粒膜, 复合靶是由在高纯度的 Fe 靶上粘贴高纯度的 Ag 片组成, 其成分由两者的相对面积来控制, 最终组分用扫描电子显微镜测定. 溅射前样品室的压强为  $7 \times 10^{-4}$  Pa, 溅射时 Ar 气的压强为  $3 \times 10^{-2}$  Pa. 溅射速率约为 0.1 nm/s, 通过溅射时间来控制膜厚, 所有样品的厚度均在 200 nm 左右, 这样可消除界面干涉的影响. 在真空条件下对所有的样品退火 1 h. 采用 X 射线衍射法对样品结构进行了测定. 光学常数用扫描型椭圆仪测量, 在  $8.0 \times 10^5$  A/m 磁场强度下测量了极向磁光 Kerr 效应<sup>[3]</sup>. 用振动样品磁强计测量了面内和垂直方向的磁滞回线. 所有测量都是在室温下进行.

\* 国家自然科学基金(批准号:69425004)、上海应用物理研究中心和上海市科学技术委员会资助的项目.

## 3 结果及讨论

由 X 射线衍射可清楚地观察到在不同退火条件下的  $\text{Fe}_{45}\text{Ag}_{55}$  颗粒膜衍射峰的变化. 图 1 是在制备态及不同退火温度下的 X 射线衍射曲线. 在未退火情况下, 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. 随着退火温度的升高, 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略有移动, 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. Ag(111) 面间距  $d$  由 0.2334 nm 变到 0.2354 nm, 400 °C 退火后接近于体单晶 Ag(111) 面间距 0.236 nm 的值, 而 Fe(110) 面间距  $d$  为 0.20248 nm 接近于体 Fe 的 bcc 单晶 (110) 面间距 0.2029 nm 的值. 因此, 经高温退火后 Fe-Ag 颗粒膜结构具有 fcc 的 Ag 和 bcc 的 Fe 两相共存的特征. 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<sup>[4]</sup>. 根据 X 射线衍射峰的半高宽, 利用 Scherrer 公式<sup>[5]</sup>,  $D = 0.9\lambda / [\delta(2\theta) \cos(\theta)]$ , 可以计算出晶粒的直径, 其中  $\lambda = 0.154$  nm 是  $\text{CuK}\alpha$  的波长,  $\delta(2\theta)$  是 Ag(111) 峰的半高宽,  $2\theta$  为衍射角, 结果如图 1 中的插图所示. 结果表明随着退火温度的升高, Ag 晶粒的尺寸逐渐变大. 一般情况下, 随着晶粒尺寸的增加, 颗粒本身的尺寸也随着退火温度的升高而变大, 同理, Fe 颗粒的尺寸也随退火温度的升高而变大.

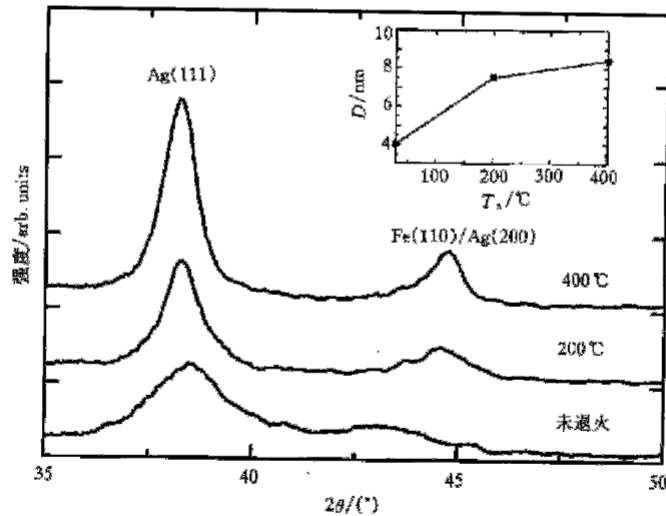


图 1 不同退火温度下的 XRD 与 Ag 晶粒尺寸的变化曲线

图 2 是  $\text{Fe}_{45}\text{Ag}_{55}$  样品在制备态和 200—500 °C 退火 1 h 条件下膜面内和垂直于膜面的磁滞回线及矫顽力的变化曲线. 在未退火情况下垂直于膜面的矫顽力  $H_c$  几乎为零, 而平行于膜面的矫顽力约为 5571 A/m, 且其易磁化轴在面内. 随着退火温度的升高, 其矫顽力逐渐增加, 在 400 °C 时垂直于膜面的  $H_c$  达到了最大值, 随后开始下降, 而膜面内的  $H_c$  仍略有增加,  $H_c$  与颗粒尺寸有很大的关系. 这与文献[4]报道的结果相类似. 一般而言, 当颗粒尺寸很小时, 磁性颗粒为超顺磁颗粒, 由热效应引起的自旋自发转动而导致的矫顽力将

趋近于零. 而当磁性颗粒逐渐增大时, 磁性颗粒呈单畴或多畴状态, 磁化强度的变化主要由自旋引起, 所需要的能量较大,  $H_c$  也较大. 总而言之, 当磁性颗粒比较小时, 平行于膜面和垂直于膜面的矫顽力均随磁性颗粒的增大而增大, 即随退火温度的升高而增加. 当然, 在退火过程中颗粒的形状会发生变化, 这也将引起  $H_c$  的变化.

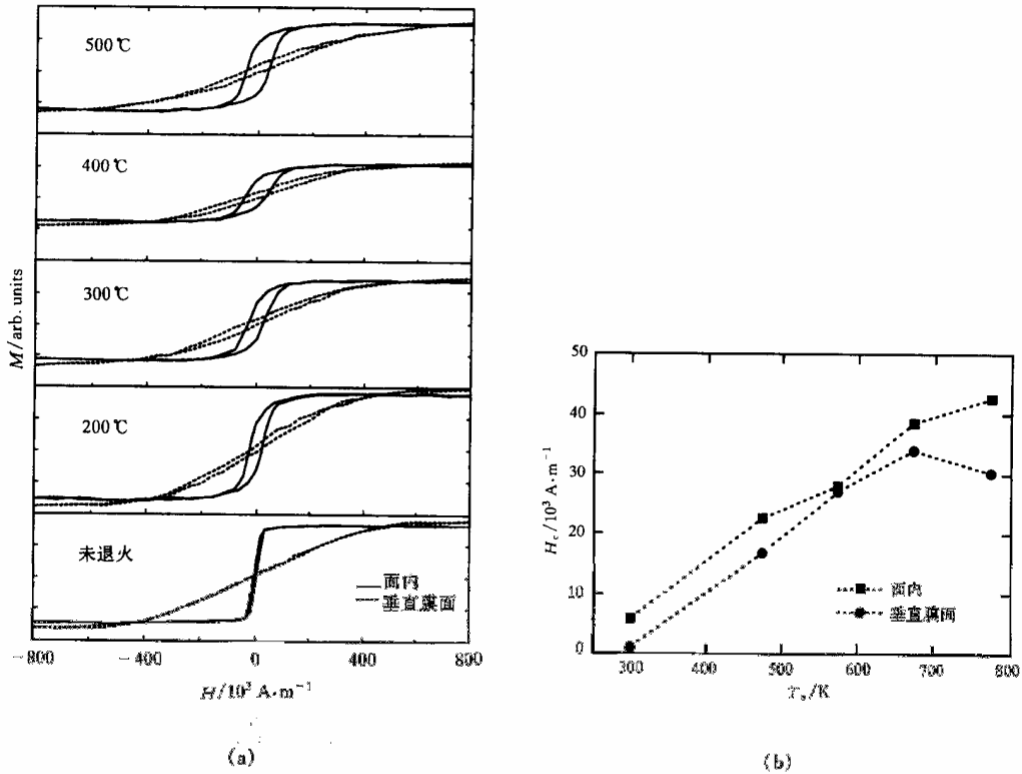


图2 面内和垂直膜面的磁滞回线(a)及矫顽力曲线(b)

图3给出了不同退火条件下 Fe<sub>45</sub>Ag<sub>55</sub> 的 Kerr 旋转角  $\theta_K$  随光子能量的变化关系. 从图3可以看出, 未退火时(曲线 a), 在 2.0—4.0 eV 之间  $\theta_K$  几乎没有变化, 其值在 0.13° 左右. 随着退火温度的升高(曲线 b、曲线 c、曲线 d、曲线 e、曲线 f 分别表示退火温度为 100, 200, 300, 400, 500 °C), 在被测的光谱范围内,  $\theta_K$  谱出现了两个峰, 其中在 2.0 eV 附近的峰变化较为缓慢. 低温退火时, 随温度的升高而增加, 退火温度为 200 °C 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 3.85 eV 附近, 其峰值随退火温度的升高而逐渐增加.

根据介电常数的测量值, 可以计算出能量损失谱  $\text{Im}(-1/\epsilon)$ , 结果如图4所示. 一般而言, 对于金属材料在  $\epsilon_1 \approx 0$ ,  $\epsilon_2$  较小时, 体能量损失谱将出现一最大值, 该位置对应于等离子体振荡吸收边. 由图4可知, 对于 Fe-Ag 样品, 其对应的能量位置为 3.85 eV 附近, 与 Ag 的能带结构中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 Co-Ag, Ag-SiO<sub>2</sub> 等颗粒膜中观察到的现象相似<sup>[7]</sup>, 这都归因于 Ag 颗粒的光学尺寸效应.

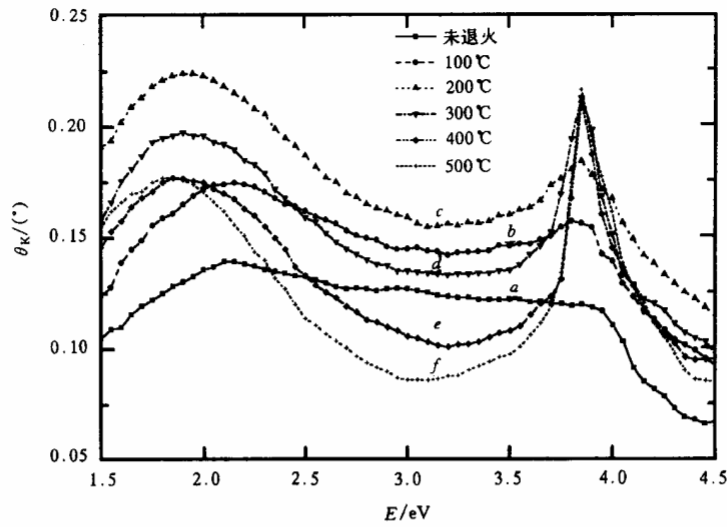


图 3 不同退火温度下的 Kerr 角随能量的变化曲线

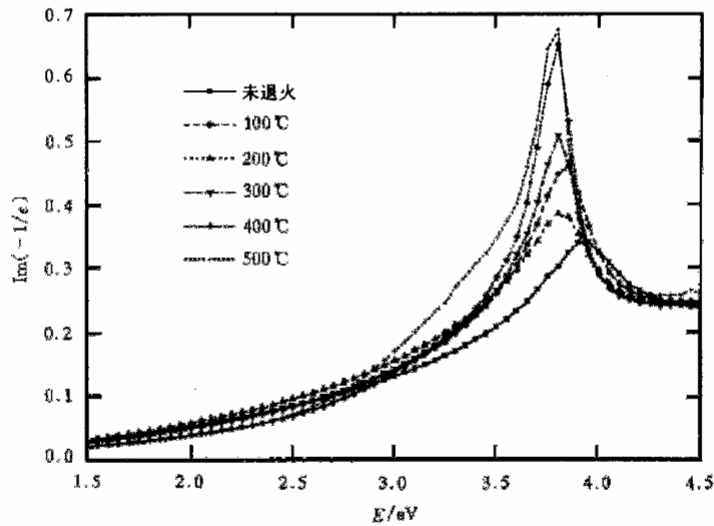


图 4 不同退火温度下 FeAg 的体能量损失谱 \$\text{Im}(-1/\epsilon)\$

材料的磁光性质与其光学性质有着密切的联系,磁光效应在于磁性材料的介电张量中的非对角元.为了解 Fe-Ag 颗粒膜磁光增强的原因,根据均匀材料的复磁光 Kerr 函数公式,可以计算出颗粒膜材料的等效介电张量的非对角元  $\epsilon_{xy}$ ,

$$\Phi_K = \theta_K - i\epsilon_K = \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon(\epsilon-1)}} = \frac{(A-iB)\epsilon_{xy}}{A^2+B^2}. \quad (1)$$

可以求得

$$\theta_K = \frac{A\epsilon_{xy1} + B\epsilon_{xy2}}{A^2 + B^2},$$

$$\epsilon_K = \frac{-A\epsilon_{xy2} + B\epsilon_{xy1}}{A^2 + B^2} \quad (2)$$

或

$$\begin{aligned} \epsilon_{xy1} &= A\theta_K + B\epsilon_K, \\ \epsilon_{xy2} &= B\theta_K - A\epsilon_K, \end{aligned} \quad (3)$$

其中

$$\begin{aligned} \epsilon_{xy} &= \epsilon_{xy1} + i\epsilon_{xy2}, \\ A &= n^3 - 3nk^2 - n, \\ B &= -k^3 + 3n^2k - k, \end{aligned}$$

式中  $n$  和  $k$  分别为薄膜的折射率和消光系数。

根据测得的光学常数和磁光参数可以计算出  $A/(A^2 + B^2)$ ,  $B/(A^2 + B^2)$ ,  $\epsilon_{xy1}$ ,  $\epsilon_{xy2}$  随能量的变化关系, 结果示于图 5. 由图 5(a)可知, 在等离子体吸收边附近,  $A/(A^2 + B^2)$  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

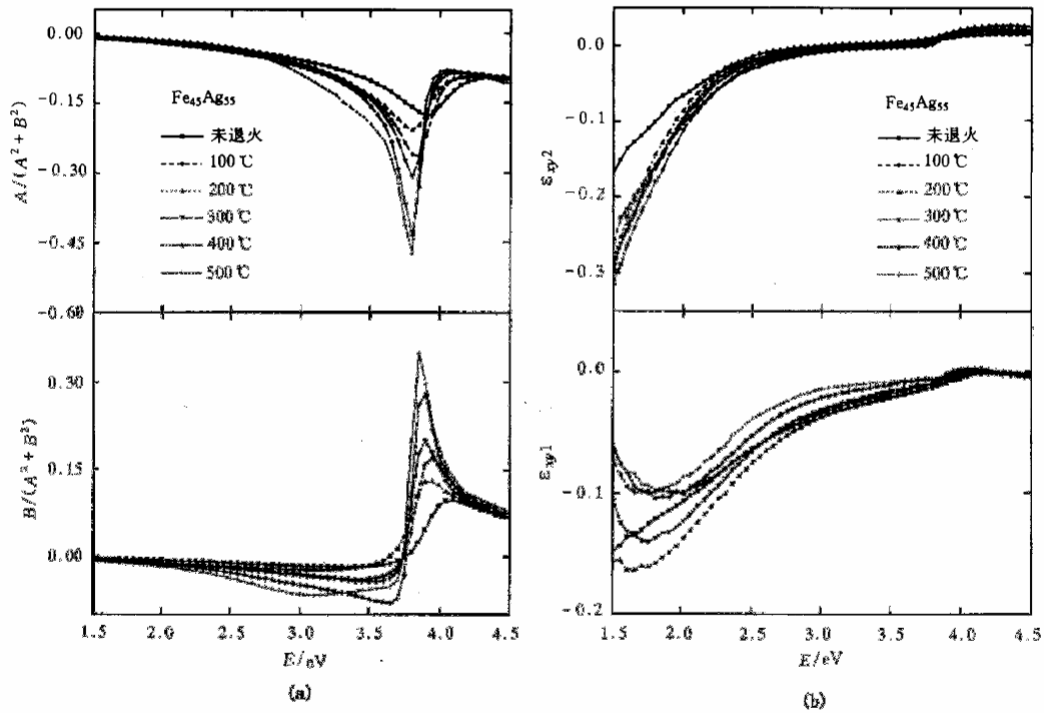


图 5 计算的  $A/(A^2 + B^2)$ ,  $B/(A^2 + B^2)$ (a) 和  $\epsilon_{xy1}$ ,  $\epsilon_{xy2}$ (b) 随能量的变化曲线

正的振荡峰且正峰的幅值远大于负峰的幅值. 由图 5(b)可以看出,  $\epsilon_{xy1}$  随退火温度变化十分明显, 随着退火温度的升高, 首先在 2.0 eV 附近出现一负峰, 到 200 °C 时达到最大, 然后该峰的幅度逐渐减小, 400 °C 以上时变化趋于减小, 而  $\epsilon_{xy2}$  的变化在 100—500 °C 退火时的变化不十分明显. 在 Fe-Ag 颗粒膜中, 只有 Fe 对等效非对角元  $\epsilon_{xy}$  的变化有直接贡献,

在 2.0 eV 附近,  $A/(A^2 + B^2)$ ,  $B/(A^2 + B^2)$ ,  $\epsilon_{xy1}$  和  $\epsilon_{xy2}$  都小于零. 由(2)式可知,  $\theta_K$  在此出现了一增强峰, 该峰来源于 Fe 颗粒的贡献. 在 3.85 eV 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 3.85 eV 附近出现一尖锐的峰, 主要受 Ag 等离子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 Fe-Ag 颗粒基本上可被认为不互溶, 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. 随着退火温度的继续升高, 无序分布的 Fe 颗粒不断地从 Ag 基底中析出, 最终形成 bcc 的 Fe 和 fcc 的 Ag 的两相混合体. 随着结构的变化, 磁性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, 颗粒 Ag 的等离子体吸收将增强(图 4), 所以在 3.85 eV 附近出现的  $\theta_K$  增强峰与等离子吸收增强有关, 这在 Co-Ag 系列样品中也得到了证实<sup>[7]</sup>. 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强. 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, 一方面随着 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, 光学吸收及其对磁光效应的影响在不断地增加, 从而导致磁光效应随退火温度的升高而增强.

#### 4 结 论

通过对 Fe<sub>45</sub>Ag<sub>55</sub> 颗粒膜在不同退火条件下的结构、磁性和磁光性质的详细研究, 发现 Fe-Ag 颗粒膜的磁性和磁光效应的变化与颗粒尺寸的变化有着密切的联系. 随着退火温度的升高, 其结构的变化导致了磁性和磁光性质也发生相应的变化, 如面内和垂直方向的  $H_c$  均随退火温度的升高而增大. 同时, 在 3.85 eV 处的 Kerr 角一直随之增加, 但是其余部分却先增加然后减小, 这表明颗粒的尺寸对磁性和磁光效应有重要的影响.

- [1] G. Xiao, J. S. Jiang, C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992), 3749.
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, A. Friedrich, J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 2472.
- [3] L. Y. Chen, S. M. Zhou, Y. X. Zheng, Y. J. Wang, *Opt. Eng.*, **36**(1997), 3188.
- [4] Y. X. Zheng, S. H. Liou, K. W. Lee, C. P. Reed, A. Nazareth, *J. Appl. Phys.*, **69**(1991), 5273.
- [5] B. D. Cullity, *Elements of X-ray Diffraction* (Addison-Wesley, Reading, MA, 1978), p. 100.
- [6] J. P. Wang, H. L. Luo, N. F. Gao, Y. Y. Liu, *J. Mater. Sci.*, **32**(1996), 727.
- [7] S. Y. Wang, W. M. Zheng, D. L. Qian, L. Y. Chen, *J. Appl. Phys.*, **85**(1999), 5121.

---

**THE INFLUENCE OF PARTICLE SIZE ON  
MAGNETO-OPTICAL KERR EFFECT  
IN Fe<sub>45</sub>Ag<sub>55</sub> GRANULAR FILMS\***

ZHAO HAI-BIN WANG SONG-YOU SHEN ZUO-CHENG

ZHANG RONG-JUN WANG HUI<sup>a)</sup> CHEN LIANG-YAO

(*Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433*)

<sup>a)</sup>(*Department of Material Science, Fudan University, Shanghai 200433*)

(Received 10 June 1999)

ABSTRACT

Using X-ray diffraction, vibrating sample magnetometer and magneto-optical measurement, the structure, magnetism and magneto-optical properties of the Fe<sub>45</sub>Ag<sub>55</sub> granular films for different annealing temperatures have been studied. The samples were prepared by ion beam sputtering. Results show that magneto-optical Kerr effect are closely related to particle size.

**PACC:** 3260; 3345; 7920

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 69425004), Shanghai Research Center for Applied Physics and the Shanghai Science and Technology Committee.