

# ЭВОЛЮЦИЯ ОПТИЧЕСКИХ И МАГНИТООПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ В НАНОКОМПОЗИТАХ АМОРФНЫЙ МЕТАЛЛ – ДИЭЛЕКТРИК

*Е. А. Ганьшина\**, *М. В. Вашук*, *А. Н. Виноградов*,  
*А. Б. Грановский*, *В. С. Гуцин*, *П. Н. Щербак*

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119992, Москва, Россия*

*Ю. Е. Калинин*, *А. В. Ситников*

*Воронежский технический университет  
394026, Воронеж, Россия*

*Ч. О. Ким\*\**, *Ч. Г. Ким\*\**

*ReCAMM, Chungnam National University, Taejeon, 305-764, Korea*

Поступила в редакцию 13 октября 2003 г.

В широкой области концентраций  $x$  исследованы магнитные, оптические и магнитооптические свойства гранулированных наноконпозитов аморфный ферромагнитный металл–диэлектрик  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  и  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ . Обнаружено усиление магнитооптического отклика для наноконпозитов вблизи перколяционного перехода. Впервые на основе экспериментально измеренных оптических констант и экваториального эффекта Керра рассчитаны диагональные и недиагональные компоненты тензора диэлектрической проницаемости для наноконпозитов. Установлено, что концентрационные зависимости недиагональных компонент этого тензора нелинейны по  $x$  и наиболее сильные изменения наблюдаются вблизи порога перколяции. Теоретическое моделирование магнитооптического эффекта и тензора диэлектрической проницаемости в рамках приближения эффективной среды показало, что симметризованное приближение Максвелла–Гарнетта при определенном предположении о микроструктуре композита дает хорошее полуколичественное совпадение теоретических и экспериментальных кривых.

PACS: 72.80.Tm, 74.25.Na, 78.20.Ls

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Значительный интерес, который вызывают в настоящее время композитные материалы, обусловлен целым рядом проявляемых ими необычных и практически важных свойств, делающих их чрезвычайно перспективным объектом как для фундаментальных, так и для прикладных исследований. Различают два типа магнитных гранулированных сплавов: ферромагнитный металл (FM) — немагнитный металл и FM–диэлектрик. Сплавы второго типа так-

же называют композитами. В первом типе гранулированных сплавов обнаружен эффект гигантского магнитосопротивления [1]. Второй тип проявляет такие свойства, как туннельное магнитосопротивление и гигантский эффект Холла [2]. Изучение магнитооптических (МО) свойств гранулированных сплавов ведется в связи с возможностью их использования в качестве магнитоактивной среды для устройств перпендикулярной магнитной записи, в бесконтактных МО-датчиках магнитного поля и температуры. Недавно предложено использовать гранулированные сплавы и в качестве МО-элемента в магнитофотонных кристаллах. Для всех этих приложений

\*E-mail: eagan@magn.ru

\*\*Chong-Oh Kim, Cheol Gi Kim, E-mail: cgkim@cnu.ac.kr

важной задачей является поиск оптимальных составов с усиленным МО-откликом.

Особенности, присущие нанообъектам, должны проявляться не только в магнитотранспортных свойствах, но и в линейных и нелинейных оптических и МО-эффектах, природа которых в наноматериалах остается до конца не выясненной. Эти эффекты должны быть чувствительными к изменениям магнитной и электронной структур, к механизмам рассеяния, к характерным размерам, форме и топологии нанонеоднородностей. На это указывают выполненные в последнее время исследования МО-спектров сплавов и композитов [3–11], которые выявили многочисленные особенности линейного и нелинейного МО-эффектов Керра и ряда других свойств. Так, при исследовании гранулированных систем было обнаружено усиление МО-отклика [3, 4], причем это явление может быть обусловлено изменением как МО-параметров, так и оптических. Например, при исследовании многослойной системы  $[\text{Co}(x)/\text{SiO}_2(y)]_n$  [3] в области энергии 3 эВ было зафиксировано увеличение амплитуды МО-эффекта в несколько раз по сравнению с пленкой однородного кобальта такой же толщины. Аналогичное усиление эффекта резонансного характера наблюдалось и при исследовании системы  $\text{MnAs}/\text{GaAs}$  [4], причем в этой работе, исходя из анализа спектральных зависимостей компонент тензора диэлектрической проницаемости, было показано, что основной вклад в усиление МО-отклика вносит увеличение МО-активности данной системы в узком спектральном диапазоне. В гранулированных системах металл–диэлектрик  $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$  [5] и  $\text{CoFeZr}/\text{SiO}_n$  [6] в IR-диапазоне длин волн был обнаружен новый магниторефрактивный эффект, превышающий традиционные нечетные и четные МО-эффекты на отражении в десятки раз.

Для описания МО-спектров гранулированных сплавов в настоящее время развито несколько методов расчета, основанных на приближении эффективной среды [12–17]. Для систем типа металл–металл с успехом применяется приближение Бруггемана [13, 14], в то же время в случае систем типа металл–диэлектрик оно зачастую оказывается несостоятельным в связи с сильным влиянием микроструктуры сплава на его свойства, и возникает необходимость применения симметризованного приближения Максвелла–Гарнетта [15, 16], более тонко учитывающего топологию исследуемой системы.

Однако, несмотря на значительное количество работ, посвященных исследованию МО-свойств магнитных нанокompозитов, до настоящего момента не

были выполнены комплексные исследования таких систем, позволяющего построить эффективный тензор диэлектрической проницаемости, анализ которого может дать более полную информацию о наблюдаемых явлениях. В то же время практически не исследовались магнитооптические свойства гранулированных сплавов на основе аморфных материалов. Такие сплавы в ближайшем будущем, возможно, объединят в себе все уникальные свойства магнитных композитов и в то же самое время обладать свойствами, характерными для аморфных веществ. В настоящей работе приведены результаты исследования магнитных, оптических и МО-свойств нанокompозитов аморфный металл–диэлектрик  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  и  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ . Впервые на основе полученных экспериментальных результатов для данного типа нанокompозитов рассчитан тензор диэлектрической проницаемости, а также выполнено его теоретическое моделирование в рамках приближений Бруггемана и Максвелла–Гарнетта. Особое внимание было уделено выяснению корреляции между микроструктурой нанокompозита и его МО-откликом. Известно, что наличие чрезвычайно сильной зависимости МО-эффектов от различных структурных параметров (формы и размера гранул, их распределения) нанокompозитных систем является важным преимуществом МО-методов исследования [3, 4, 7–10].

## 2. ПОЛУЧЕНИЕ ОБРАЗЦОВ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Нанокompозиты аморфный FM–диэлектрик составов  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  и  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  были получены методом ионно-лучевого напыления в атмосфере аргона [18]. Для этой цели была использована вакуумная камера с тремя источниками ионно-лучевого распыления. Для напыления использовались сплавные или составные мишени. Сплавные мишени  $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}$  и  $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{V}_{20}$  изготавливались методом индукционной вакуумной плавки. Для приготовления сплавов использовались кобальт чистотой 99.98%, карбонильное железо, бор и цирконий с содержанием компонентов в соответствии с составом сплава. Составная мишень представляла собой сплавную мишень с закрепленными на ее поверхности пластинами из монокристалла кварца. Толщина полученных пленочных образцов составляла 0.15–6.5 мкм. Размеры гранул монотонно уменьша-

лись с увеличением концентрации диэлектрика от 5–7 нм в композите с большим содержанием металлической фазы ( $x = 56\%$ ) до 2–4 нм в композите с  $x = 30\%$  (здесь и далее концентрация металлической фазы  $x$  указывается в атомных процентах). Структура нанокompозитов изучалась с помощью просвечивающей микроскопии. Состав полученных композитов контролировался электронно-зондовым рентгеноспектральным микроанализом. На основе исследования концентрационной зависимости удельного электросопротивления был определен порог перколяции для этих систем, который составил  $x_{per} \approx 43\%$ . Исследование магнитосопротивления полученных материалов показало, что они обнаруживают эффект туннельного магнитосопротивления с ярко выраженным максимумом вблизи порога перколяции и снижением величины магнитосопротивления до нуля за порогом протекания. Для системы  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(SiO_2)_{100-x}$  значения туннельного магнитосопротивления достигали 4% при комнатной температуре в поле 11 кЭ и были несколько меньше для системы  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$  [18].

Для исследования МО-свойств данных образцов мы использовали МО-эффект Керра в экваториальной геометрии, который заключается в относительном изменении интенсивности  $p$ -волны линейно поляризованного света при отражении от образца в намагниченном и ненамагниченном состояниях:

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

где  $I(H)$  и  $I(0)$  — интенсивности отраженного света соответственно при приложении магнитного поля и без него.

Спектральные и полевые зависимости экваториального эффекта Керра были измерены при помощи автоматизированного МО-спектрометра в диапазоне энергий падающего света  $E$  от 0.5 до 4 эВ при нескольких углах падения света. Амплитуда приложенного переменного магнитного поля достигала 3.5 кЭ. Для регистрации сигнала был применен динамический метод, позволяющий измерять относительное изменение интенсивности света вплоть до  $10^{-5}$ . Ошибка измерений при этом не превышала 5%. Измерение статических приповерхностных петель гистерезиса было проведено на МО-магнитометре в меридиональной геометрии при  $E = 1.98$  эВ и угле падения света  $\varphi = 70^\circ$ . Измерение оптических параметров  $n$  и  $k$  проводилось эллипсометрическим методом [19] в диапазоне энергий от

0.5 до 3.4 эВ. Все измерения проведены при комнатной температуре.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1а представлены спектральные зависимости экваториального эффекта Керра для нанокompозитов  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$ . Так же как и для других гранулированных сплавов, наблюдается существенное изменение вида МО-спектров композитов по сравнению со спектром однородного

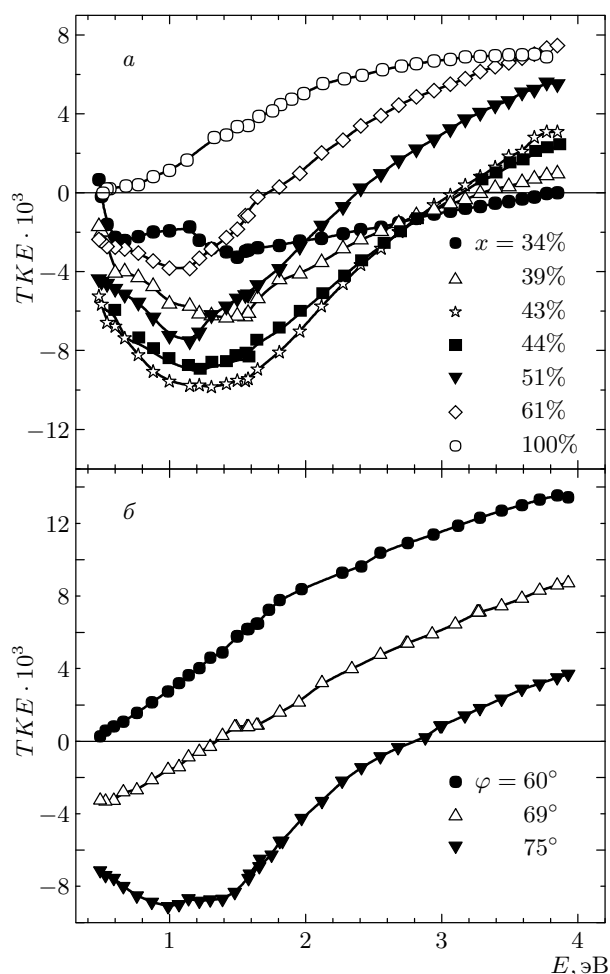


Рис. 1. Спектры экваториального эффекта Керра (ТКЕ) образцов системы  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$  при различных значениях  $x$  для угла падения света  $\varphi = 70^\circ$  (а) и образца системы  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(SiO_2)_{100-x}$  с  $x = 47\%$  при различных углах падения света (б)

аморфного сплава  $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$  ( $x = 100\%$ ). Если при уменьшении энергии падающего света величина эффекта для  $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$  монотонно уменьшается до значений близких к нулю, то в спектре экваториального эффекта Керра для наноконпозитов  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  при угле падения света  $\varphi = 70^\circ$  по мере уменьшения энергии наблюдается смена знака эффекта и появление большого отрицательного максимума в районе 1.3 эВ. Аналогичное поведение демонстрируют и спектры образцов системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  с той разницей, что максимум эффекта при  $\varphi = 70^\circ$  сдвинут в область  $E = 1.0$  эВ. На рис. 1б можно видеть характерное для обеих исследуемых систем изменение спектров экваториального эффекта Керра при изменении угла падения света  $\varphi$ . Уменьшение угла падения света до  $60^\circ$  ведет к резкому преобразованию формы спектров, в результате чего их вид приближается к виду спектра однородного аморфного сплава соответствующего состава. Наиболее ярко зависимость экваториального эффекта Керра от концентрации магнитной составляющей наноконпозита проявляется при углах падения света близких к  $70^\circ$ , что связано с близостью этих углов к углу Брюстера для наноконпозитов с  $x < x_{per}$ . Концентрационные зависимости величины экваториального эффекта Керра для системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  приведены на рис. 2. Видно, что спектры экваториального эффекта Керра в «красной» области спектра проявляют немонотонную зависимость от концентрации  $x$  FM-компоненты, обнаруживая «излом» при значении  $x$  близком к  $x_{per}$ .

Кроме того, можно заметить, что в области энергий 1.3 эВ величина экваториального эффекта Керра для образца системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  с  $x = 43\%$  составляет по модулю примерно  $10^{-2}$ , что более чем в 3 раза превышает значение эффекта для однородного сплава  $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$  ( $x = 100\%$ ) при той же энергии света. Таким образом, в узкой области энергий наблюдается заметное усиление экваториального эффекта Керра в гранулированной системе, находящейся вблизи порога перколяции. Это усиление имеет место, несмотря на более чем в 2 раза меньшее содержание FM-составляющей. Аналогичный результат получаем и в случае системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ , где максимальный эффект также наблюдается вблизи от  $x_{per}$ .

На рис. 3 представлены петли гистерезиса для образцов  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  с различной концентрацией  $x$  металлической фазы. При значениях  $x$ , меньших  $x_{per}$ , зависимости экваториального эффекта Керра от приложенного магнитного поля имеют

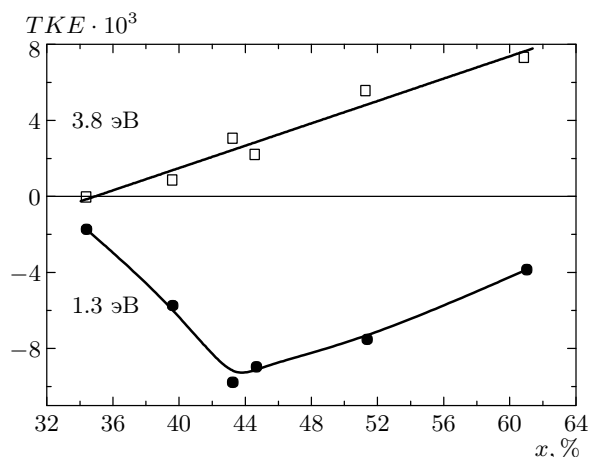


Рис. 2. Зависимость величины экваториального эффекта Керра от концентрации  $x$  для системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  при энергии падающего света  $E = 1.3$  эВ и  $E = 3.8$  эВ,  $\varphi = 70^\circ$

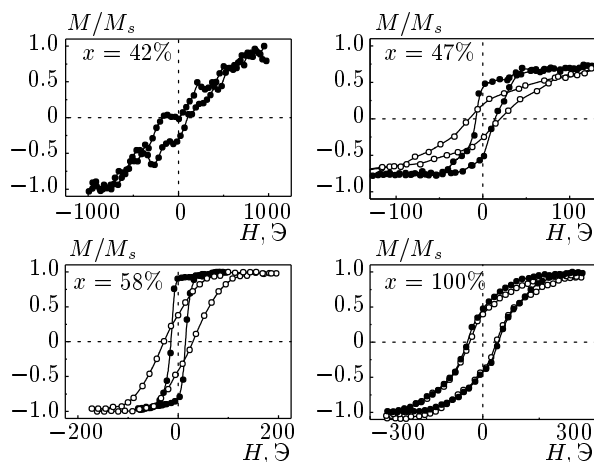


Рис. 3. Петли гистерезиса вдоль оси легкого намагничивания (темные точки) и вдоль оси трудного намагничивания (светлые точки) для образцов системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  с различной концентрацией  $x$

безгистерезисный вид, характерный для суперпарамагнетиков. Измерения, проведенные для этих образцов в различных направлениях, показали, что магнитное состояние, в котором они находятся, является изотропным. Однако в области концентраций близких к  $x_{per}$  происходит существенное изменение магнитных свойств исследуемой системы. Для образца с  $x = 47\%$  обнаружено анизотропное FM-поведение полевых зависимостей с коэрцитивной силой  $H_c \approx 10$  Э и полем насыщения  $H_s \approx 30$  Э вдоль оси легкого намагничивания и  $H_s \approx 100$  Э

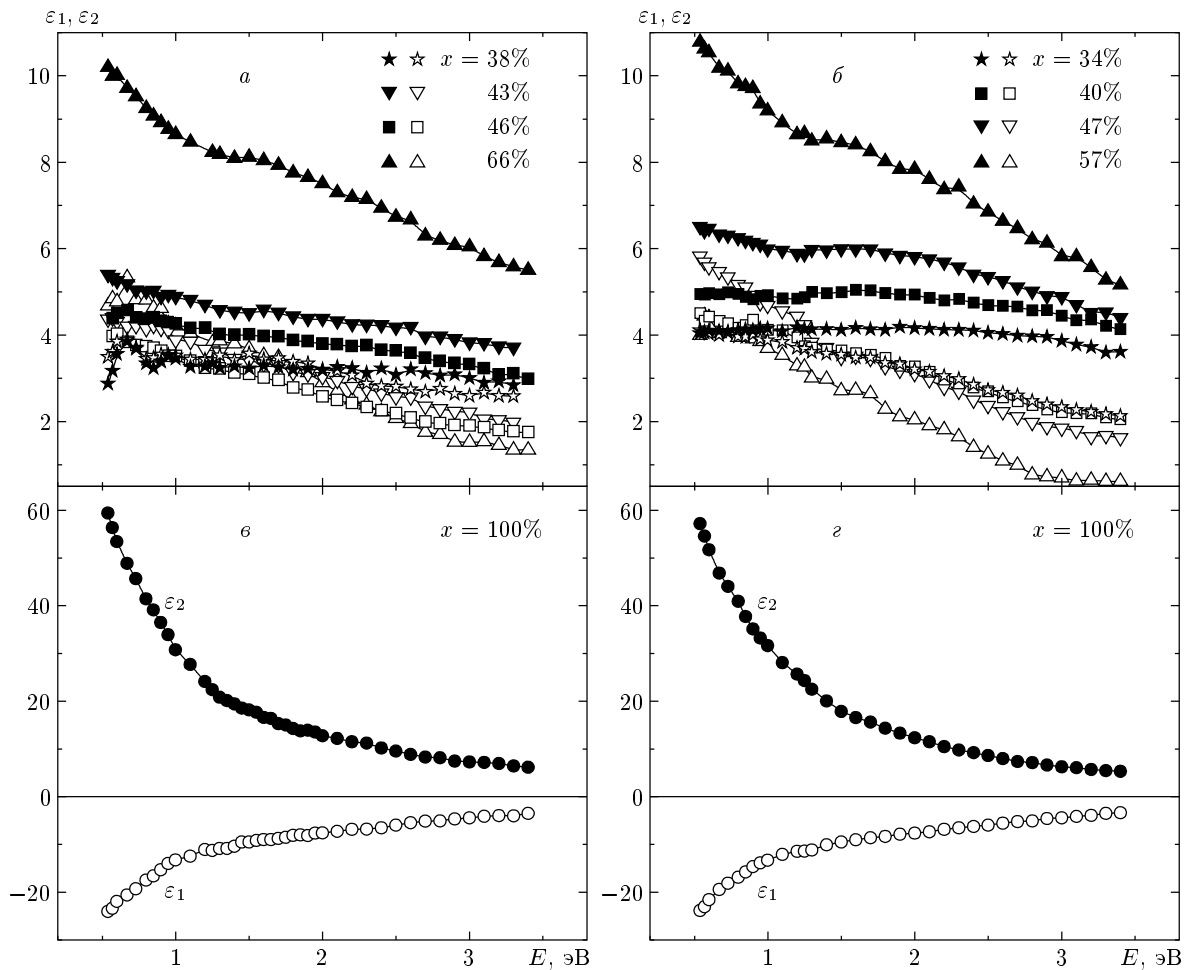


Рис. 4. Действительная  $\epsilon_1$  (светлые значки) и мнимая  $\epsilon_2$  (темные значки) части диагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости систем  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  (а, в) и  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  (б, г) при различных  $x$

вдоль оси трудного намагничивания. При дальнейшем увеличении  $x$  наблюдается рост  $H_c$  и  $H_s$ , однако магнитная анизотропия системы уменьшается.

Таким образом, на основе анализа полевых зависимостей можно сделать вывод, что при малых концентрациях  $x$  металлическая фаза сосредоточена в изолированных гранулах небольшого размера, а система находится в изотропном суперпарамагнитном состоянии. По мере увеличения  $x$  происходит рост металлических гранул вдоль определенного направления, находящегося в плоскости пленки, с последующим образованием анизотропной ФМ-фазы. При этом значение  $x$ , при котором наблюдается появление ФМ-фазы, и значение  $x_{per}$ , определенное из исследования концентрационной зависимости электросопротивления, хорошо согласуются друг с другом. Дальнейшее увеличение концентрации  $x$  металличе-

ской фазы и рост гранул приводят к уменьшению магнитной анизотропии. Существование выделенного направления роста гранул, вероятно, обусловлено особенностями технологии напыления исследуемых пленок и в первую очередь связано с приложением при распылении постоянного магнитного поля [18].

На основе полученных экспериментальных оптических и МО-данных можно рассчитать диагональную  $\epsilon = \epsilon_1 - i\epsilon_2$  и недиагональную  $\epsilon' = \epsilon'_1 - i\epsilon'_2$  компоненты тензора диэлектрической проницаемости, который в случае гироэлектрической среды намагниченной вдоль оси  $z$  имеет вид

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon & i\epsilon' & 0 \\ -i\epsilon' & \epsilon & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon \end{pmatrix}. \quad (1)$$

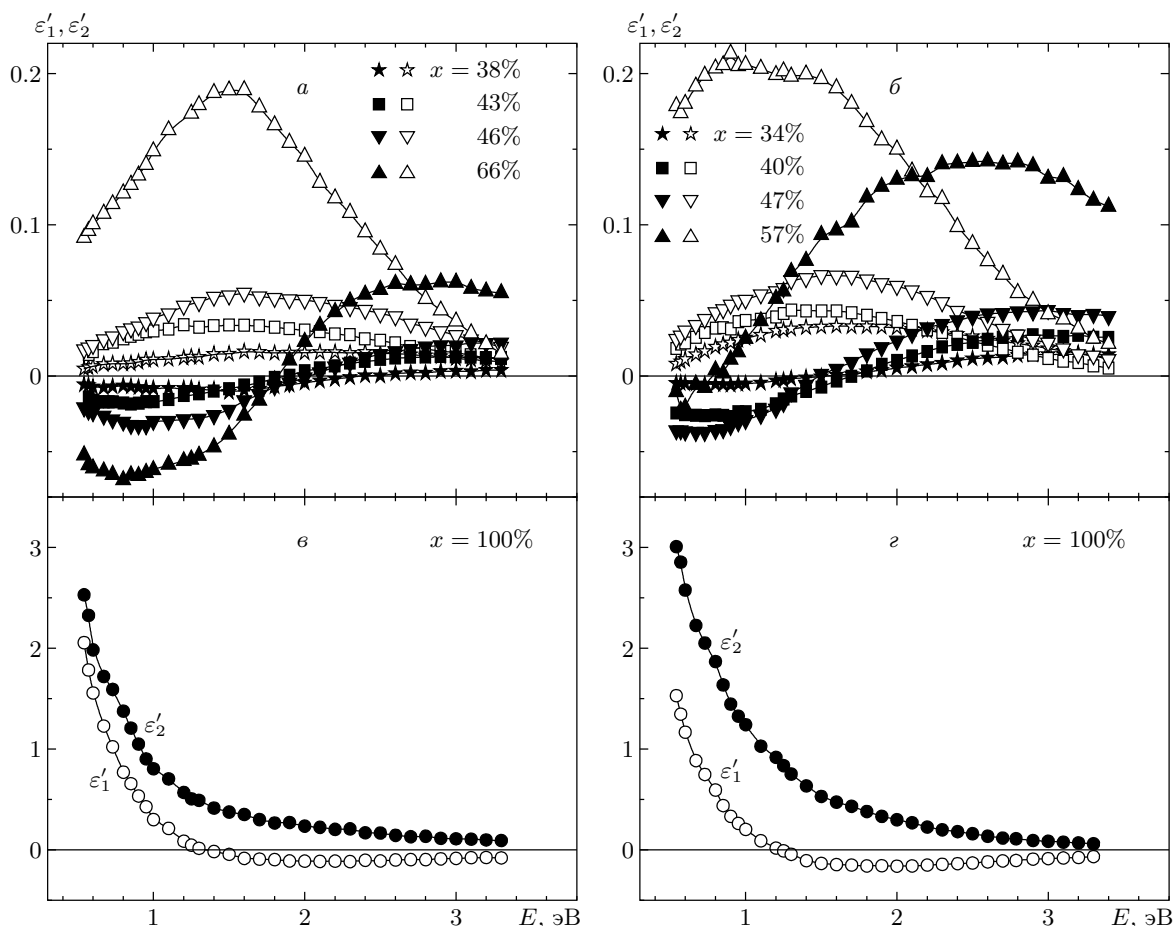


Рис. 5. Действительная  $\epsilon'_1$  (светлые значки) и мнимая  $\epsilon'_2$  (темные значки) части недиагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости систем  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  (а, в) и  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  (б, г) при различных  $x$

Величина экваториального эффекта Керра при этом выражается следующей формулой [20]:

$$\delta = (a\epsilon'_1 + b\epsilon'_2) \frac{\sin 2\varphi}{a^2 + b^2}, \quad (2)$$

где  $\varphi$  — угол падения света,  $a = \epsilon_2(2\epsilon_1 \cos^2 \varphi - 1)$ ;  $b = \cos^2 \varphi(\epsilon_2^2 - \epsilon_1^2 + 1) + \epsilon_1 - 1$ . При этом  $\epsilon_1 = n^2 - k^2$ ,  $\epsilon_2 = 2nk$ , где  $n$  и  $k$  — соответственно коэффициенты преломления и поглощения. Таким образом, имея экспериментально определенные значения экваториального эффекта Керра при двух углах падения света, а также значения  $n$  и  $k$ , мы можем разрешить это уравнение, определив компоненты тензора диэлектрической проницаемости.

Как и следовало предполагать исходя из сравнения спектральных МО-зависимостей композитов и однородного сплава, компоненты тензора диэлектрической проницаемости для гранулированных образцов имеют существенно иной вид по сравнению

с соответствующими компонентами тензора диэлектрической проницаемости однородного сплава. По оптическим спектрам, представленным на рис. 4, можно наблюдать увеличение значений мнимой части диагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости  $\epsilon_2$  нанокompозитов с ростом  $x$ , и наиболее сильно это увеличение выражено в ближней IR-области спектра, где велик вклад электронов проводимости. Такое поведение характерно для всех гранулированных нанокompозитов, при этом значения  $\epsilon_2$  как для системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ , так и для системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  остаются значительно меньше, чем для соответствующего аморфного сплава. Действительная часть диагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости  $\epsilon_1$  нанокompозитов по сравнению с однородным аморфным сплавом меняет знак, при этом значение модуля  $\epsilon_1$  для этих систем в

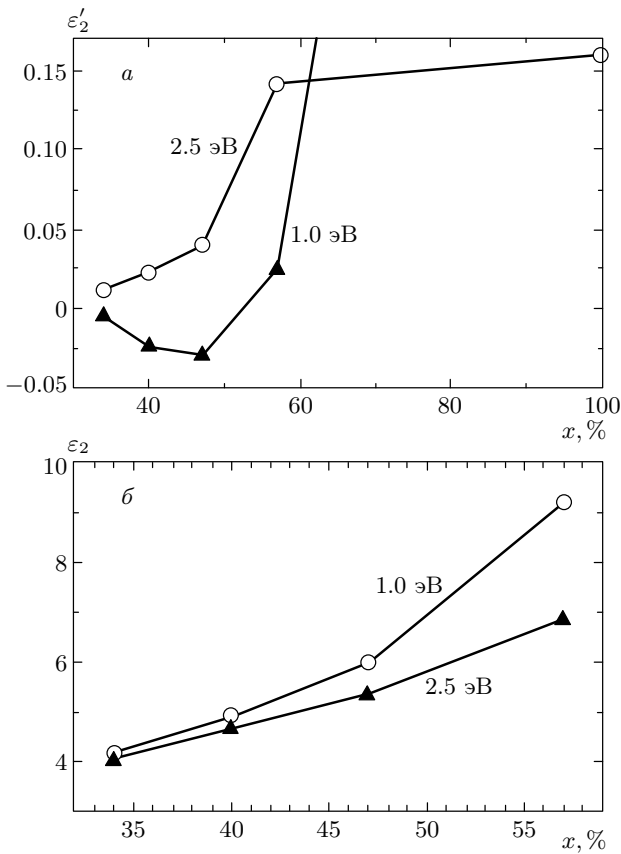


Рис. 6. Зависимость величины мнимой части недиагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости от концентрации  $x$  при энергиях падающего света  $E = 1.0$  эВ и  $E = 2.5$  эВ для системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$

ближней IR-области примерно в 5 раз меньше. Дисперсионные зависимости недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости  $\epsilon_1'$  и  $\epsilon_2'$  ( $\epsilon' = \epsilon_1' - i\epsilon_2'$ ) приведены на рис. 5. Видно, что для нанокомпозитов обеих систем действительная часть  $\epsilon_1'$  при уменьшении энергии световых квантов увеличивается и при  $E_{fet} \sim 1.5$  эВ для  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  достигает максимума. В этой же области спектра мнимая часть недиагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости  $\epsilon_2'$  пересекает нуль. При дальнейшем движении в область меньших энергий света наблюдается монотонное уменьшение величины  $\epsilon_1'$ , в то время как  $\epsilon_2'$  растет. Подобное поведение недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости характерно для всех исследуемых образцов с концентрацией металлической компоненты  $x$  меньше  $x_{per}$ . Однако для нанокомпозита  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{57}(\text{SiO}_2)_{43}$  с  $x > x_{per}$  наблюдается резкий сдвиг  $E_{fet}$  в область

энергии 1 эВ. На рис. 6 представлены концентрационные зависимости величин  $\epsilon_2$  и  $\epsilon_2'$  при некоторых выделенных значениях энергии падающего света. Из приведенных кривых видно, что изменение  $x$  гораздо сильнее влияет на МО-свойства ( $\epsilon_2'$ ), чем на оптические ( $\epsilon_2$ ). Наиболее сильная особенность в поведении  $\epsilon_2'$  наблюдается вблизи концентрации  $x = 44\%$  при энергии  $E = 1$  эВ, т.е. вблизи порога перколяции. Такое поведение, вероятно, связано с резким изменением в микроструктуре гранулированного сплава вблизи перколяционного перехода, наиболее сильно отражающегося в МО-спектрах именно в ближней IR-области спектра, где должен проявляться вклад размерных эффектов.

Следует отметить, что, в отличие от спектров экваториального эффекта Керра, в спектрах недиагональной компоненты тензора диэлектрической проницаемости, ответственной за МО-активность материала, мы не наблюдаем усиления по сравнению с однородным аморфным сплавом. Более того, в «красной» области спектра величина  $\epsilon_2'$  в случае  $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}$  более чем на порядок превышает значение  $\epsilon_2'$  для композита  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  с  $x = 43\%$ , который демонстрировал максимальный эффект именно в этом интервале энергий.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

Для интерпретации полученных результатов мы провели моделирование экспериментальных кривых в рамках приближения Бруггемана [13, 14] и симметризованного приближения Максвелла-Гарнетта [15, 16].

Согласно теории Бруггемана, МО-спектры могут быть рассчитаны как функция оптических и МО-параметров компонент сплава, коэффициента объемного заполнения  $f$  магнитных частиц и их формы. Алгоритм вычислений можно представить следующим образом [8]. В линейном приближении по намагниченности эффективный тензор диэлектрической проницаемости гранулированного ФМ-сплава может быть записан как

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon^{EMA} & i\epsilon'^{EMA} & 0 \\ -i\epsilon'^{EMA} & \epsilon^{EMA} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon^{EMA} \end{pmatrix}. \quad (3)$$

В пределах малых полей и для эллипсоидальных частиц выражения для диагональной и недиагональной частей тензора диэлектрической проницаемости

в рамках приближения Бруггемана выглядят следующим образом:

$$f(\varepsilon^1 - \varepsilon^{EMA}) / (\varepsilon^{EMA} + (\varepsilon^1 - \varepsilon^{EMA})L_j) + (1-f)(\varepsilon^0 - \varepsilon^{EMA}) / (\varepsilon^{EMA} + (\varepsilon^0 - \varepsilon^{EMA})L_j) = 0, \quad (4)$$

$$f(\varepsilon'^{EMA} - \varepsilon'^1) / [\varepsilon^1 + (\varepsilon^1 - \varepsilon^{EMA})L_j]^2 + (1-f)\varepsilon'^{EMA} / [\varepsilon^{EMA} + (\varepsilon^0 - \varepsilon^{EMA})L_j]^2 = 0, \quad (5)$$

где  $\varepsilon^1 = \varepsilon_1^1 - i\varepsilon_2^1$  и  $\varepsilon'^1 = \varepsilon_1'^1 - i\varepsilon_2'^1$  — соответственно диагональная и недиагональная части тензора диэлектрической проницаемости магнитной компоненты, а  $\varepsilon^0 = \varepsilon_1^0 - i\varepsilon_2^0$  — диэлектрическая проницаемость немагнитной компоненты. Решив эти уравнения, легко рассчитать экваториальный эффект Керра, используя соотношение (2).

Приближение Бруггемана не учитывает наличия в среде отдельных гранул, что затрудняет описание сплавов со сложной топологией.

Приближение Максвелла–Гарнетта, как и симметризованное приближение Максвелла–Гарнетта [12, 17], учитывает наличие в среде отдельных частиц. При этом, в отличие от обычного приближения Максвелла–Гарнетта, симметризованное рассматривает среду, состоящую из двух типов частиц. Один тип частиц (А) представляет собой компоненту материала 1 внутри компоненты материала 2, другой тип (В), наоборот, — компоненту 2 внутри компоненты 1. В нашем случае материал 1 есть металлическая компонента сплава, а материал 2 — диэлектрическая матрица (SiO<sub>2</sub>). Вероятность появления каждого вида частиц в сплаве описывается вероятностной моделью Шенга [21]:

$$P_A = u_1 / (u_1 + u_2)$$

и

$$P_B = u_2 / (u_1 + u_2),$$

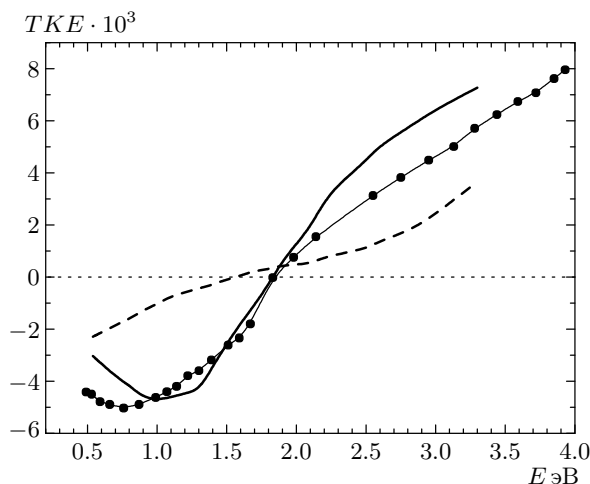
где

$$u_1 = (1 - f^{1/3})^3$$

и

$$u_2 = [1 - (1 - f)^{1/3}]^3.$$

Эффективный тензор диэлектрической проницаемости среды такой микроструктуры рассчитывается в два этапа. На первом этапе рассчитывается эффективный тензор диэлектрической проницаемости для каждого типа частиц в рамках приближения Максвелла–Гарнетта. На этом этапе, благодаря особенностям используемого приближения, закладывается



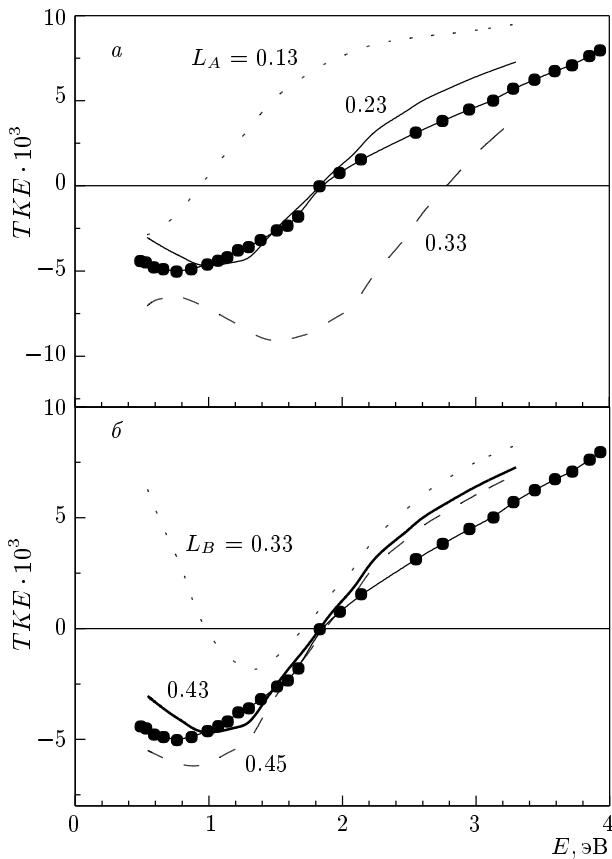
**Рис. 7.** Экспериментальные (точки) и рассчитанные в приближении Бруггемана (штриховая кривая,  $x = 44\%$ ,  $L = 0.33$ ) и симметризованном приближении Максвелла–Гарнетта (сплошная кривая,  $x = 44\%$ ,  $L_A = 0.23$ ,  $L_B = 0.43$ ) спектральные зависимости экваториального эффекта Керра для образца  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{47}(\text{SiO}_2)_{53}$  при угле падения  $\varphi = 69^\circ$

влияние на свойства среды присутствия в ней отдельных, четко выраженных гранул. Далее эффективная среда строится уже из частиц типов А и В и используется приближение Бруггемана.

Симметризованное приближение Максвелла–Гарнетта имеет ряд преимуществ, таких как возможность рассчитывать спектры при любых значениях объемной концентрации металлической компоненты с учетом микроструктуры образца, а также более точное описание перколяционного перехода, что имеет существенное значение для расчета систем металл–диэлектрик.

Попытка описать полученные экспериментально результаты в рамках приближения Бруггемана не привела к удовлетворительным результатам. Рассчитанные кривые не описывали поведения спектральных зависимостей экваториального эффекта Керра исследуемых образцов (рис. 7). Это связано с тем, что простая теория Бруггемана рассматривает скорее агрегатную среду, чем гранулированную и не учитывает наличия отдельных частиц в нанокompозите. В связи с этим для учета влияния микроструктуры образца на его оптические и МО-свойства мы провели их моделирование в рамках симметризованного приближения Максвелла–Гарнетта. При моделировании в рамках этого приближения для расчета компонент тензора диэлектрической проницаемости





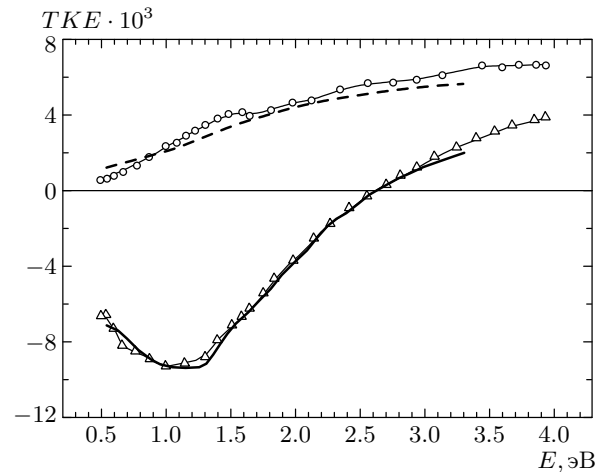
**Рис. 8.** Результаты моделирования в симметризованном приближении Максвелла–Гарнетта спектральных зависимостей экваториального эффекта Керра для образца  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  с различными формфакторами  $L_A$  (а) и  $L_B$  (б) при  $x = 44\%$ ,  $L_B = 0.43$  (а) и  $L_A = 0.23$  (б), точки — эксперимент

эффективной среды используется коэффициент объемного заполнения  $f$ . Ясно, что этот коэффициент отличается от концентрации магнитной компоненты  $x$  из-за разности плотностей вещества матрицы и внедренного материала. Для перерасчета  $x$  в  $f$  нами была использована следующая формула:

$$f = \frac{1}{1 + V_b/V_a}, \quad (6)$$

$$\frac{V_b}{V_a} = \frac{1-x}{x} \beta, \quad (7)$$

где  $\beta = \rho_a P_b / \rho_b P_a$ ,  $\rho_a$  и  $P_a$  — плотность и молекулярный вес одной из компонент компонента, а  $\rho_b$  и  $P_b$  — плотность и молекулярный вес другой компоненты. Для сплавов системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  величина  $\beta = 1.12$ ,

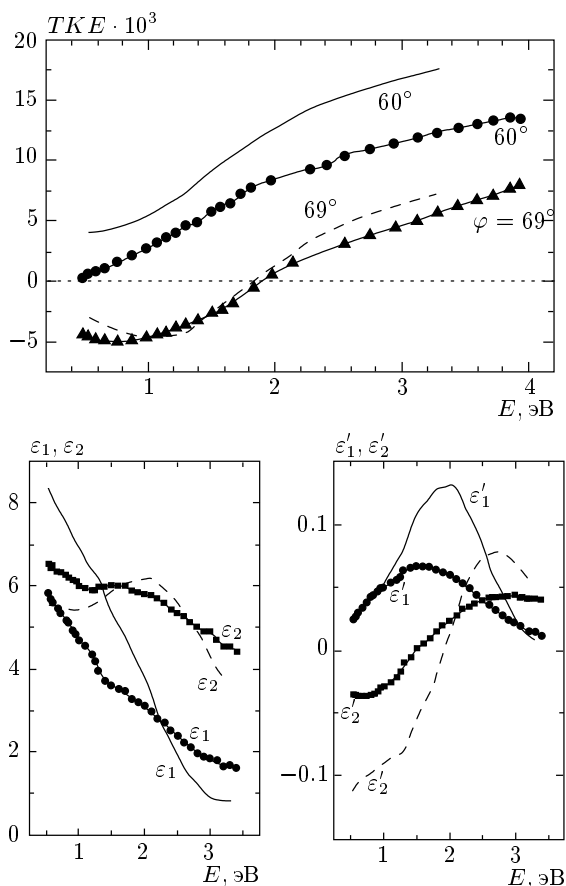


**Рис. 9.** Результаты моделирования в симметризованном приближении Максвелла–Гарнетта спектральных зависимостей экваториального эффекта Керра для образцов системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  с малыми  $x$ : штриховая кривая —  $x = 35\%$ ,  $L_A = 0.25$ ,  $L_B = 0.43$ ,  $\alpha = 0.25$ ; сплошная кривая —  $x = 42\%$ ,  $L_A = 0.18$ ,  $L_B = 0.25$ ,  $\alpha = 0.5$ ;  $\circ$  —  $x = 34\%$ ,  $\varphi = 60^\circ$ ,  $\Delta$  —  $x = 40\%$ ,  $\varphi = 75^\circ$

а для сплавов  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  имеем  $\beta = 1.22$ .

Подбор параметров при моделировании мы начинали с МО-спектров при угле падения света  $70^\circ$ , так как МО-эффекты более, чем оптические спектры, чувствительны к изменениям формфакторов частиц [8].

Результаты расчета в рамках теории Максвелла–Гарнетта, а также сравнение смоделированных кривых с экспериментальными зависимостями экваториального эффекта Керра представлены на рис. 8–11. Можно видеть, что варьирование формфакторов обоих видов частиц ( $L_A$  и  $L_B$ ) приводит к заметному изменению вида смоделированных спектров. Так, например (см. рис. 8а), изменение формфактора  $L_A$  всего на 0.1 (как в одну, так и в другую сторону от параметров, описывающих экспериментальный спектр) приводит к значительному отклонению смоделированных кривых от экспериментальных во всем диапазоне длин волн. При аналогичном изменении формы частиц  $B$  (формфактора  $L_B$ ) также наблюдается сильное изменение вида смоделированных МО-спектров, особенно в ближней ИР-области (рис. 8б). То есть только при использовании для расчета значений  $L_A$  и  $L_B$  из очень узкого диапазона величин удается получить как каче-



**Рис. 10.** Результаты моделирования в симметризованном приближении Максвелла–Гарнетта (сплошная и штриховая кривые) оптических и магнитооптических спектров образца  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{47}(\text{SiO}_2)_{53}$  при  $x = 44\%$ ,  $L_A = 0.23$ ,  $L_B = 0.43$ ; точки — эксперимент

ственное, так и количественное согласование теории и эксперимента. Таким образом, на основе результатов моделирования можно сделать вывод о форме частиц композита. В рассмотренном нами примере образец, имеющий состав  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_{47}(\text{SiO}_2)_{53}$ , состоит из частиц типа  $A$  с формфактором равным 0.43 (почти сферическая, слегка сплюснутая по направлению поля частица) и из частиц типа  $B$ , близких по форме к вытянутым по направлению поля эллипсоидам ( $L_B = 0.23$ ).

Отметим, что для описания в приближении Максвелла–Гарнетта спектров экваториального эффекта Керра образцов с малым содержанием металлической компоненты, являющихся суперпарамагнетиками, при расчете недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости вводился дополнительный коэффициент  $\alpha$  — фактор недомагни-

чивания, учитывающий, что в используемых полях образцы с малым содержанием металлической компоненты далеки от насыщения. Исходя из полученных результатов можно оценить степень недомагничивания образцов при измерении экваториального эффекта Керра. Так, для образца с содержанием металла 40 % для системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ , например, недомагничивание до насыщения составляло 50 % (см. рис. 9), а для образца с  $x = 34\%$   $\alpha = 0.25$ .

Из сравнения результатов моделирования для тензора диэлектрической проницаемости и экваториального эффекта Керра (см. рис. 10) можно видеть, что даже при хорошем количественном совпадении экспериментальных кривых экваториального эффекта Керра с расчетными для диагональных и недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости наблюдается только полуколичественное совпадение экспериментальных и теоретических кривых. По-видимому, это связано с более сложной реальной микроструктурой образцов, а также с распределением гранул по форме и размеру.

Необходимо отметить, что моделирование образцов системы  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  было проведено без использования квазиклассического размерного эффекта. Однако квазиклассический размерный эффект, суть которого сводится к учету изменения времени свободного пробега электронов в гранулах по сравнению с массивным образцом, также позволяет улучшить совпадение теории с экспериментом [22]. Это видно на рис. 11, на котором представлены результаты моделирования спектральных зависимостей экваториального эффекта Керра для образцов системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ . Необходимо отметить, что на графиках представлены результаты расчета спектров экваториального эффекта Керра с учетом параметров квазиклассического размерного эффекта, таких как отношение коэффициентов аномального эффекта Холла на поверхности гранул и в массивном образце ( $R_s/R_{bulk}$ ), а также размера частиц металлических включений ( $r$ ). Более подробно учет квазиклассического размерного эффекта описан в [22]. На рисунке видно, что благодаря его учету даже у образцов с высоким содержанием металла (а значит с большими гранулами), наблюдается изменение формы спектра экваториального эффекта Керра от характерного для массивного образца  $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$  в сторону спектров, обнаруженных на гранулированном сплаве  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ . Помимо того, легко заметить, что размер гранул, который используется при учете квазиклассического размерного эффекта,

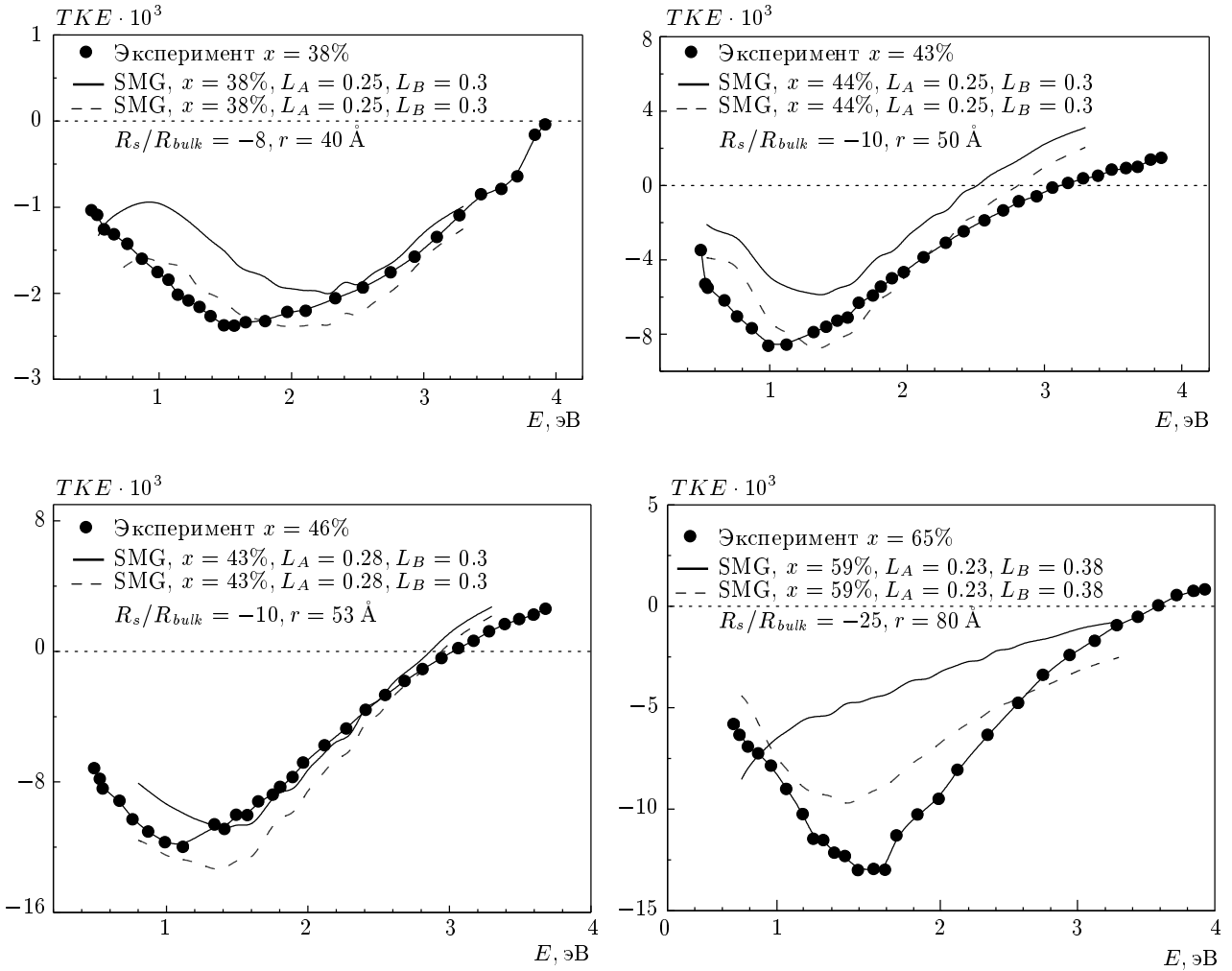


Рис. 11. Результаты моделирования в симметризованном приближении Максвелла–Гарнетта (сплошная и штриховая кривые) с учетом квазиклассического размерного эффекта спектральных зависимостей экваториального эффекта Керра образцов системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  для различных  $x$ ; точки — эксперимент

увеличивается с уменьшением концентрации диэлектрика, что хорошо согласуется со структурными исследованиями.

### 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе проведенных исследований можно заключить, что в магнитных наноккомпозитах аморфный металл–диэлектрик вблизи порога перколяции наблюдается существенное усиление магнитооптического отклика в ближней IR-области. Изменение микроструктуры и топологии гранулированных сплавов в большей степени влияет на МО-спектры, чем на оптические.

Концентрационные зависимости недиагональ-

ных компонент тензора диэлектрической проницаемости нелинейны по  $x$ , и наиболее сильные изменения наблюдаются вблизи порога перколяции, что позволяет МО-методами экспериментально определять значение  $x_{per}$ .

Обнаруженное усиление МО-отклика вблизи порога перколяции в области энергий 1.3 эВ для системы  $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  и 1.0 эВ в случае  $(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  не связано с усилением МО-активности в этом спектральном диапазоне, а обусловлено изменением оптических и магнитооптических параметров при изменении топологии и микроструктуры наноккомпозитов.

Теоретическое моделирование частотных зависимостей экваториального эффекта Керра и спектров

компонент тензора диэлектрической проницаемости в приближении эффективной среды показывает, что лучшее совпадение экспериментальных и теоретических кривых наблюдается в симметризованном приближении Максвелла–Гарнетта, что позволяет следить за изменением параметров микроструктуры гранулированных сплавов и даже проводить их количественную оценку. Учет квазиклассического размерного эффекта также позволяет улучшить описание экспериментальных результатов.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 03-02-16127, 03-02-06301, 03-02-17164) и The Korean Science and Engineering Foundation (грант № 033-A39-002).

## ЛИТЕРАТУРА

1. H. Fujimori, S. Mitani, and S. Ohnuma, *Mater. Sci. Eng. B* **13**, 219 (1995).
2. A. Pakhomov, X. Yan, and Y. Xu, *J. Appl. Phys.* **79**, 6140 (1996).
3. E. Gan'shina, A. Granovsky, B. Dieny et al., *Physica B* **299**, 260 (2001).
4. H. Akinaga, M. Mizuguchi, T. Manado et al., *J. Magn. Magn. Mat.* **242–245**, 470 (2002).
5. И. В. Быков, Е. А. Ганьшина, А. Б. Грановский, В. С. Гушин, *ФТТ* **42**, вып. 3, 48 (2000).
6. А. Б. Грановский, И. В. Быков, Е. А. Ганьшина и др., *ЖЭТФ* **123**, 1256 (2003).
7. E. Gan'shina, A. Granovsky, V. Gushin, M. Kuzmichev, P. Podrugin, A. Kravetz, and E. Shipil, *Physica A* **241**, 45 (1997).
8. E. Gan'shina, R. Kumaritova, A. Bogorodisky, M. Kuzmichev, and S. Ohnuma, *J. Magn. Soc. Jpn.* **23**, 379 (1999).
9. A. B. Granovsky, E. A. Gan'shina, A. N. Vinogradov et al., *Phys. Met. Metallogr.* **92**, Suppl. 1, S52 (2001).
10. V. G. Kravets, A. K. Petford-Long, and A. F. Kravets, *J. Appl. Phys.* **87**, 1762 (2000).
11. T. V. Murzina, E. A. Gan'shina, V. Guschin et al., *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3769 (1998).
12. Ю. И. Петров, *Физика малых частиц*, Наука, Москва (1982).
13. D. A. G. Bruggeman, *Ann. Physik. (Leipzig)* **24**, 636 (1935).
14. T. K. Xia, P. M. Hui, and D. S. Stroud, *Appl. Phys.* **67**, 2736 (1989).
15. G. A. Niklasson and C. G. Granqvist, *J. Appl. Phys.* **55**, 3382 (1984).
16. A. Granovsky, M. Kuzmichov, and J. P. Clerc, *J. Magn. Soc. Jpn.* **23**, 382 (1999).
17. J. C. M. Garnett, *Phil. Trans. Roy. Soc. London* **203**, 385 (1904).
18. Ю. Е. Калинин, А. Т. Пономаренко, А. В. Ситников, О. В. Стогней, *Физика и химия обработки материалов* **5**, 14 (2001).
19. J. R. Beattie and G. K. T. Kohn, *Phil. Mag.* **460**, 222 (1955).
20. Г. С. Кринчик, *Физика магнитных явлений*, Изд-во МГУ, Москва (1985).
21. P. Sheng, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 60 (1980).
22. А. Б. Грановский, М. В. Кузьмичев, А. Н. Юрасов, *Вестник МГУ, сер. Физика. Астрономия* **6**, 67 (2000).