

# 纳米 Fe-In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒膜的巨磁光 Faraday 效应

张林 张连生 萧淑琴

(山东大学物理与微电子学院, 济南 250100. E-mail: zhanglin@sdu.edu.cn)

**摘要** 研究了射频溅射法制备的纳米“铁磁金属-半导体基体”Fe-In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒膜的巨磁光 Faraday 效应. 实验结果表明, 当 Fe 体积百分比为 35% 时, 颗粒膜样品的室温 Faraday 旋转角  $\theta_F$  数值达到  $10^5$  (°)/cm 数量级. Fe<sub>0.35</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>0.65</sub> 颗粒膜样品的 Faraday 旋转角  $\theta_F$  随温度的变化关系表明, 当温度低于 10 K 时,  $\theta_F$  数值随温度的下降而迅速增大, 在温度  $T = 4.2$  K 时 Faraday 旋转角  $\theta_F$  达到  $10^6$  (°)/cm. 通过研究颗粒膜低场磁化率  $\chi(T)$  与温度的关系以及不同温度下的磁滞回线, 证明当温度降低到临界温度  $T_p = 10$  K 时, 颗粒膜中发生“铁磁态-类自旋玻璃态”转变. Fe<sub>0.35</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>0.65</sub> 颗粒膜样品的 Faraday 旋转角  $\theta_F$  在温度低于 10 K 时的迅速增大, 可能是由于纳米“铁磁金属-半导体基体”Fe<sub>0.35</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>0.65</sub> 颗粒膜样品在处于“类自旋玻璃态”时存在 sp-d 交换作用造成的.

**关键词** 颗粒膜 磁光 Faraday 效应 结构 磁性

纳米金属复合颗粒膜是指具有纳米尺寸的金属颗粒嵌埋于某种薄膜基体中所形成的新型复合材料体系, 近年来在其结构、磁性和磁输运特性等方面的研究已取得许多重要成果 [1-6], 成为纳米材料研究领域的重要组成部分. 到目前为止, 所研究的纳米磁性颗粒膜主要为两种类型: 即“铁磁金属-非磁金属基体”颗粒膜(如 Fe-Cu 和 Co-Ag 颗粒膜 [1,3])和“铁磁金属-非磁绝缘体基体”颗粒膜(如 Fe-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和 Co-SiO<sub>2</sub> 颗粒膜等 [2,4,5]), 而对纳米“铁磁金属-半导体基体”颗粒膜研究不多. 我们利用射频溅射法制备了纳米“铁磁金属-半导体基体”Fe<sub>x</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub> 颗粒膜. In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 是一种可见光透明的宽禁带半导体材料, 将纳米 Fe 颗粒均匀地嵌埋于 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 半导体基体中, 磁性 Fe 颗粒之间及磁性 Fe 颗粒和 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 半导体基体之间的相互作用, 将会对颗粒膜的磁、光、电特性产生巨大的影响, 所产生的磁光、磁电等效应在信息技术和光电磁功能材料等领域具有重要而广阔的应用前景(如磁光信息存储、磁光传感器技术等) [1-3]. 本文报道了 Fe<sub>x</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub> 颗粒膜巨磁光 Faraday 效应的研究. 磁光 Faraday 效应是指平面偏振入射光沿外加磁场方向透射通过介质时, 其偏振面发生旋转的效应(简称 Faraday 旋转), 如果旋转角度数值特别大, 则称为“巨磁光 Faraday 效应” [7-9]. 系统地研究了 Fe<sub>x</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub> 颗粒膜的 Faraday 旋转角随 Fe 体积百分比的变化关系以及温度关系. 实验结果表明, Fe 体积百分比为 35% 的

Fe<sub>0.35</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>0.65</sub> 颗粒膜样品的室温 Faraday 旋转角  $\theta_F$  最大,  $\theta_F$  数值达到  $10^5$  (°)/cm;  $\theta_F$  随温度降低而增大, 在温度  $T = 4.2$  K 时  $\theta_F$  数值达到  $10^6$  (°)/cm. 通过深入研究这种新型颗粒膜的磁特性随温度的变化关系, 初步探讨分析了 Fe<sub>x</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub> 颗粒膜巨磁光 Faraday 效应的产生机制.

## 1 实验方法

采用射频溅射法制备纳米“铁磁金属-半导体基体”Fe<sub>x</sub>(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub> 颗粒膜, 其中  $x$  为铁的体积分数. 用纯度为 99.9% 的条形 Fe 片和 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (纯度为 99.9%) 烧结体镶嵌组成溅射用靶, 通过改变两者的面积比, 即可改变颗粒膜中 Fe 的体积分数. 样品基片为 0.2 mm 厚的玻璃片. 样品台通水冷却. 溅射气体为氩气, 在溅射过程中氩气压控制在 0.7 Pa; 溅射功率为 200 W, 溅射速率为 0.15 nm/s, 颗粒膜样品厚度为 100~500 nm. 样品的结构和颗粒膜中 Fe 颗粒的形态特征由 X 射线衍射(XRD)、电子衍射和透射电子显微镜(TEM)分析确定; 用能散 X 射线谱(EDAX)分析组元成分. 应用超导量子干涉器件磁强计(SQUID)测量样品在温度  $T = 5\sim 295$  K 范围内的低场磁化率  $\chi(T)$  曲线和高场  $M(H)$  磁化曲线. 利用磁光效应测试装置测量样品的磁光 Faraday 效应(测量时磁场  $H = 1.52 \times 10^6$  A/m, 入射光波长  $\lambda = 400\sim 850$  nm, 测量温度  $T = 4.2\sim 300$  K).

## 2 实验结果与讨论

图1是在不同温度下测得的 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品的Faraday旋转角 $\theta_F$ 随入射光能量 $E$ 的变化关系曲线.从图1中可以看到,在室温下Faraday旋转角 $\theta_F$ 达到 $10^5$  ( $^\circ$ )/cm数量级, $\theta_F$ 数值基本不随入射光能量变化.随测量温度的降低,Faraday旋转角 $\theta_F$ 数值增大;而且随温度降低,其Faraday旋转角 $\theta_F$ 数值随入射光能量 $E$ 的增加而逐渐增大.当温度 $T = 4.2$  K时,入射光能量 $E = 1.7$  eV对应的 $\theta_F$ 比室温下增大一个数量级, $\theta_F$ 数值达到 $10^6$  ( $^\circ$ )/cm,大大超过“铁磁金属-非磁绝缘体基体”颗粒膜的Faraday旋转角数值(根据文献[7]报道,在对 $\text{Fe-Al}_2\text{O}_3$ 颗粒膜的巨磁光Faraday效应研究中,观察到当 $T \approx 20$  K时, $\theta_F$ 数值最高,约为 $10^5$  ( $^\circ$ )/cm).

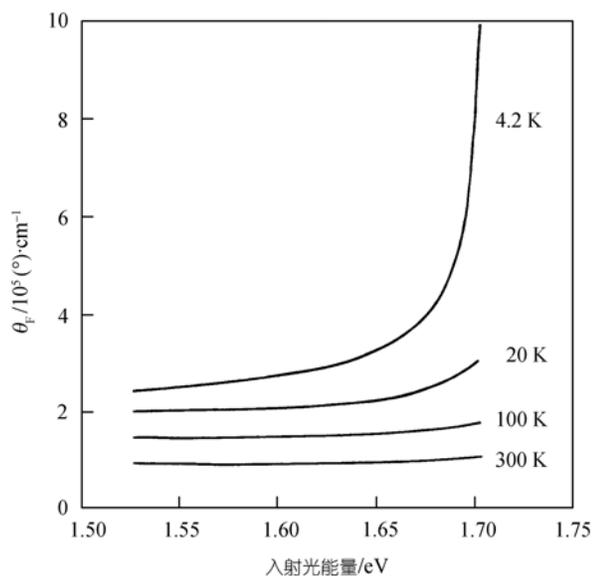


图1 不同温度下 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品的Faraday旋转角 $\theta_F$ 随入射光能量 $E$ 的变化关系曲线

测量了 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品的Faraday旋转角 $\theta_F$ 随温度 $T$ 的变化关系曲线(固定入射光能量 $E = 1.7$  eV,  $T = 4.2 \sim 100$  K),如图2.结果表明,Faraday旋转角 $\theta_F$ 数值随温度降低而逐渐增大,在 $T = 10$  K处存在一转折点(这也是在其他类型颗粒膜中未曾观察到的新现象[2]).当 $T < 10$  K时 $\theta_F$ 数值迅速增大,在 $T = 4.2$  K时达到 $10^6$  ( $^\circ$ )/cm.

由XRD谱和电子衍射分析确定,在室温下, $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品中基体 $\text{In}_2\text{O}_3$ 为非晶态结构,Fe颗粒为 $\alpha$ -Fe(bcc)结构.由TEM观测,近似球形

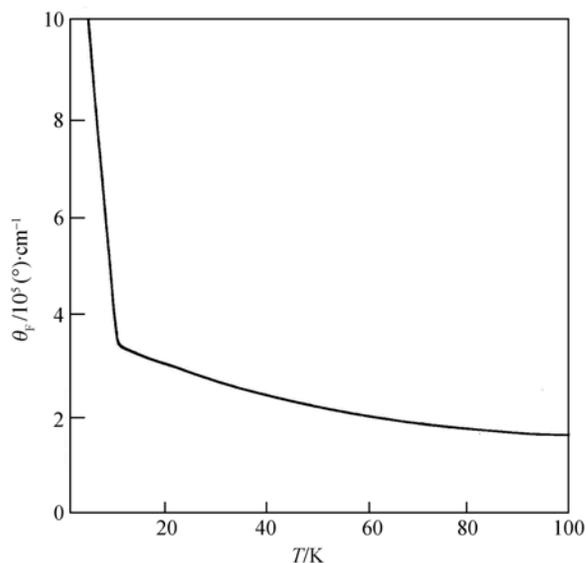


图2  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品的Faraday旋转角 $\theta_F$ 随温度 $T$ 的变化关系曲线( $E = 1.7$  eV)

的纳米Fe颗粒均匀地分布嵌入在 $\text{In}_2\text{O}_3$ 非晶态基体中,Fe颗粒的平均直径约为5 nm(见文献[6]中TEM照片和XRD谱分析结果).

为了分析Faraday旋转角 $\theta_F$ 数值随温度变化的原因,我们深入研究了 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品的磁特性温度关系.测量了 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品的低场磁化率 $\chi$ 与温度( $T = 5 \sim 295$  K)的关系曲线(图3).图3中零场冷却(ZFC)是指外磁场 $H = 0$ 下,将样品冷却至5 K,然后在 $H = 3980$  A/m下进行测量;场冷却(FC)是指外加磁场 $H = 3980$  A/m下,将样品自295 K冷却至5 K进行测量.由图3可以看到, $\chi(T)$ 曲线可以分为3个温区研究,即295~50, 50~10和10 K以下.在每个温区内选定一个温度(即5, 20, 100 K)下测量了样品的磁滞回线,其结果见图4.图3结果表明,在295~50 K温区FC曲线和ZFC曲线是重合可逆的,在50 K以下FC曲线和ZFC曲线表现为不可逆的.而由图4可以看到,温度 $T = 100$  K下磁滞回线是无磁滞的超顺磁曲线(与室温下测量的超顺磁性曲线一致),这表明50~295 K温区内 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜是处于超顺磁性状态;温度 $T = 20$  K时的磁滞回线为铁磁性的.所以,在 $T = 10 \sim 295$  K的温度范围内,低场磁化率 $\chi(T)$ 温度关系显示出 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜中纳米Fe颗粒的磁性弛豫效应(magnetic relaxation effect)(在截止温度 $T_B$ 以下为铁磁性状态,在 $T_B$ 以上为超顺磁性状态)[2,4],  $T_B = 50$  K为由超顺磁性向铁磁性

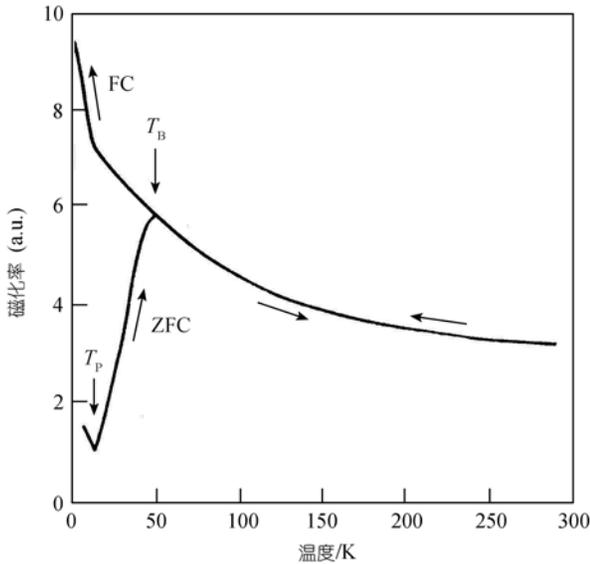


图 3  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$  颗粒膜样品的低场磁化率  $\chi(T)$  与温度关系曲线  
 $H = 3980 \text{ A/m}$ ; ZFC 为零场冷却, FC 为加场冷却

转变的有效截止温度(blocking temperature).

在图 3 中还可看到, 当温度  $T_p = 10 \text{ K}$  时, 在 ZFC 曲线上  $\chi$  出现一极小拐点变化, 而 FC 曲线上  $\chi$  也相应变化较大(拐点在 Fe 体积百分比为 35% 附近的颗粒膜样品中也出现). 图 4 表明, 温度  $T = 5 \text{ K}$  时样品的磁滞回线表现出“类自旋玻璃态”特性 [10,11], 而温度  $T = 20 \text{ K}$  时的磁滞回线为铁磁性的. 这样便证实了在图 3 中  $T_p = 10 \text{ K}$  的曲线拐点处, 颗粒膜由铁磁态转变为类自旋玻璃态(这种磁性转变形式与显示某些含 Fe 稀释合金的低温下铁磁-自旋玻璃“重入性转变”(reentrance)的磁化率温度关系 [10] 是不同的). 当温度  $T_p = 10 \text{ K}$  时, 由于各种相互作用能量的共同作用结果, 可导致  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$  颗粒膜样品的铁磁有序态被破坏, 颗粒膜样品由铁磁态转变为  $\text{Fe-In}_2\text{O}_3$  磁性半导体“类自旋玻璃态” [6,8]. 我们测量了  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$  颗粒膜样品的零场电阻率  $\rho(T)$  温度关系曲线, 结果表明当温度  $T \leq 10 \text{ K}$  时, 电阻率  $\rho$  突然增大两个数量级, 这也间接证实了上述的颗粒膜磁结构转变过程 [6]. 极低温下的“铁磁态-类自旋玻璃态”转变现象未曾在“铁磁金属-非磁绝缘体基体”颗粒膜(例如  $\text{Fe-SiO}_2$  颗粒膜: 在温度  $T = 2 \text{ K}$  时仍表现为铁磁性, 具有非常高的矫顽力  $H_c$  和剩磁  $M_r$  [12]) 中观测到. 这表明在低温下纳米“铁磁金属-半导体基体” $\text{Fe}_x(\text{In}_2\text{O}_3)_{1-x}$  颗粒膜中存

在特

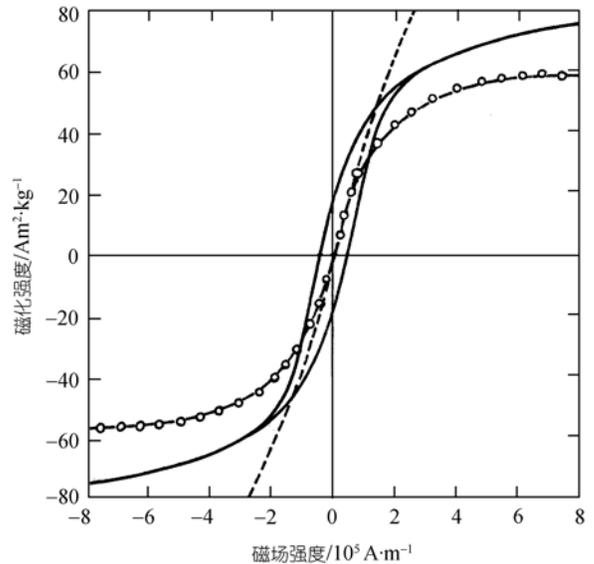


图 4 不同温度下  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$  颗粒膜样品的磁滞回线  
 其中实线示  $T = 20 \text{ K}$ , 圆圈曲线示  $T = 100 \text{ K}$ , 虚线示  $T = 5 \text{ K}$

殊、复杂的相互作用, 由此决定了颗粒膜在低温下的磁特性.

上述  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$  颗粒膜样品的磁特性随温度变化关系的研究结果表明, 在温度  $T = 10 \sim 300 \text{ K}$  范围内, 随温度降低  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$  颗粒膜样品的 Faraday 旋转角  $\theta_F$  数值逐渐增大, 主要是由于颗粒膜样品的磁化强度  $M$  增大所引起的 [7]. 当温度低于  $10 \text{ K}$  时, 颗粒膜样品的 Faraday 旋转角  $\theta_F$  数值迅速增大, 是与温度  $T = 10 \text{ K}$  时颗粒膜样品的磁结构变化有关的. 当温度  $T \leq 10 \text{ K}$  时, 颗粒膜样品的磁结构转变为  $\text{Fe-In}_2\text{O}_3$  磁性半导体“类自旋玻璃态”. 由磁性半导体材料的磁光 Faraday 效应研究可知 [8,9]: sp 带电子同磁性离子 d 电子间的交换作用(sp-d 交换作用)影响电子朗道能级自旋子能级分裂, 是产生巨磁光 Faraday 效应的重要原因(主要是吸收边附近的带间激子跃迁). 而 sp-d 交换作用与温度密切相关, 随着温度降低 sp-d 交换作用逐渐加强, 在足够低的温度下 sp-d 交换作用可导致自旋能级的巨大分裂, 从而使电子跃迁产生的 Faraday 旋转效应在吸收边附近得到极大增强(因为  $\theta_F$  也与入射光能量  $E$  有关,  $E$  越接近吸收边,  $\theta_F$  数值增加越快 [9]). 通过透射光谱测量证实:  $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$  颗粒膜样品的吸收边能量接近  $1.7 \text{ eV}$ . 所以当温度  $T < 10 \text{ K}$  时, 图 2 所显示的 Faraday 旋转角  $\theta_F$  数值(对应入射光能量  $E = 1.7 \text{ eV}$ )迅速增大, 可能是由于颗粒膜样

品处于“类自旋玻璃态”时存在的sp-d交换作用导致自旋能级的巨大分裂所造成的。另外,由于在颗粒膜中除了纳米Fe颗粒之外,还会有少量Fe离子分布于 $\text{In}_2\text{O}_3$ 基体中,因而也可能产生sp-d交换作用导致Faraday旋转角 $\theta_F$ 的增大,这就造成了当温度 $T > 10$  K时,入射光高频范围的 $\theta_F$ 数值随温度的降低而逐渐增大(如图1中 $T = 100$  K和 $T = 20$  K的曲线所示)。随着温度的变化Fe- $\text{In}_2\text{O}_3$ 颗粒膜中电子自旋能级分裂的具体情况,尚待进一步的实验和理论研究。

### 3 结论

纳米“铁磁金属-半导体基体” $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜的室温 Faraday 旋转角 $\theta_F$ 数值为 $10^5$  ( $^\circ$ )/cm。在温度 $T = 10\sim 300$  K 范围内,随温度的降低 $\theta_F$ 数值逐渐增大,主要是由于颗粒膜样品的磁化强度 $M$ 增大所引起的。当温度低于10 K时,对应入射光高频范围的 $\theta_F$ 数值随温度的下降而迅速增大,可能是由于 $\text{Fe}_{0.35}(\text{In}_2\text{O}_3)_{0.65}$ 颗粒膜样品处于“类自旋玻璃态”时,sp-d交换作用导致电子自旋能级的巨大分裂造成的。

### 参 考 文 献

- 1 Chen T Y, Huang S X, Chien C L, et al. Enhanced magnetoresistance induced by spin transfer torque in granular films with a magnetic field. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 207203 [DOI]
- 2 Hattink B J, Carcía del Muro M, Konstantinovic Z, et al. Tunneling magnetoresistance in Co-ZrO<sub>2</sub> granular thin films. *Phys Rev B*,

2006, 73: 045418 [DOI]

- 3 Borcia I D, Beauvillain P, Bartenlian B, et al. Polar Kerr spectroscopic magneto-optics in Au/Co-Ag/Ag granular thin films on glass: Experiments and simulation. *J Magn Magn Mater*, 2006, 301: 258—264 [DOI]
- 4 Nunes W C, Socolovsky L M, Denardin J C, et al. Role of magnetic interparticle coupling on the field dependence of the superparamagnetic relaxation time. *Phys Rev B*, 2005, 72: 212413 [DOI]
- 5 Chi J H, Ge S H, Liu C M, et al. Magnetic properties and the tunneling magnetoresistance effect in Co-MgF<sub>2</sub> granular films. *J Appl Phys*, 2003, 93(10): 6188—6191 [DOI]
- 6 Zhang L, Liu Y H, Zhang L S, et al. Structures and magnetic properties of nanometric Fe- $\text{In}_2\text{O}_3$  granular films. *Acta Metal Sin*, 2003, 39(1): 109—112
- 7 Dormann J L, Fiorani D, Giammaria F, et al. Magnetization measurements by magneto-optical methods on films with Fe particles in an Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> amorphous matrix. *J Appl Phys*, 1990, 67(9): 5894—5896 [DOI]
- 8 Furdyna J K. Diluted magnetic semiconductors. *J Appl Phys*, 1988, 64: R29—R64 [DOI]
- 9 Hwang Y H, Kim H, Cho S, et al. Magneto-optical properties for bulk Cd<sub>0.63- $\gamma$</sub> Mn<sub>0.37</sub>Hg <sub>$\gamma$</sub> Te single crystals. *J Appl Phys*, 2006, 100: 063509 [DOI]
- 10 Knitter R W, Kouvel J S. Field-induced magnetic transition in a Cu-Mn spin-glass alloy. *J Magn Magn Mater*, 1980, 21: 316—319 [DOI]
- 11 Konno T J, Ogawa N, Wakoh K, et al. Structure and magnetic properties of Fe/EuO granular films. *Mater Sci Eng A*, 1996, 217: 331—335 [DOI]
- 12 Xiao G, Chien C L. Giant magnetic coercivity and percolation effects in granular Fe-(SiO<sub>2</sub>) solids. *Appl Phys Lett*, 1987, 51(16): 1280—1282 [DOI]