

$Ni_xSiO_{2(1-x)}$ 颗粒膜的光学和磁光特性研究*

张荣君 李合印 朱晓松 周 鹏 李 晶

王松有 申作成 郑玉祥 陈良尧

(复旦大学信息学院光科学与工程系, 上海, 200433)

摘要 用磁控溅射法制备了一系列 $Ni_xSiO_{2(1-x)}$ 样品, 并对部分样品作快速退火处理, 室温下采用椭圆偏振光谱仪和磁光谱仪分别在 1.5~4.5eV 的光子能量区测量了样品的复介电常数谱和极向复磁光克尔谱, 研究了这种金属-绝缘体型颗粒膜的光学和磁光性质, 发现调整合适的金属含量或对样品作退火处理, 可以观察到复介电常数的实部从正到负连续变化, 而且在一定光子能量区, 其值为零; 介电张量的非对角元 and 光学常数对其磁光克尔角的增强起重要作用。

关键词 金属-绝缘体膜, 颗粒膜, 光学特性, 磁光特性。

OPTICAL AND MAGNETO-OPTICAL PROPERTIES OF $Ni_xSiO_{2(1-x)}$ GRANULAR FILMS*

ZHANG Rong-Jun LI He-Ying ZHU Xiao-Song Zhou Peng LI Jin WANG Song-You
SHEN Zuo-Cheng ZHENG Yu-Xiang CHEN Liang-Yiao

(Optical Science and Engineering Department, Fudan University, Shanghai 200433, China)

Abstract A series of $Ni_xSiO_{2(1-x)}$ granular films were made by a magnetron rf sputtering system with variation of x and the annealing process. Both the complex dielectric function and magneto-optical polar Kerr spectra of the samples were measured at room temperature in the 1.5~4.5eV photon energy range, respectively. It was found that there are new spectral features in the dielectric functions. The ϵ_1 spectra change continuously from positive to negative at the low photon energy range in these metal-insulator granular films by adjusting the composition or by the annealing process. For the $Ni_xSiO_{2(1-x)}$ samples, there are broad peaks in the Kerr rotation and ellipticity spectra. The Kerr intensities increase with increasing Ni composition. Both the off-diagonal terms of the dielectric terms tensor and optical constants play important role in the enhancement of the Kerr effect in a particular spectral range for the metal-insulator granular films.

Key words metal-insulator films, granular films, optical property, magneto-optical property.

引言

近年来,对金属-绝缘体型颗粒膜的研究引起人们的很大兴趣,比如在 $Ni_xSiO_{2(1-x)}$ 、 $(NiFe)_xSiO_{2(1-x)}$ 和 $Au_xSiO_{2(1-x)}$ 颗粒膜结构中发现的有趣的磁学和光学特性. 特别在巨磁电阻效应以后,在 $Ni_xSiO_{2(1-x)}$ 和 $(NiFe)_xSiO_{2(1-x)}$ 颗粒膜中发现的新的磁学和输运性质^[1~2]; 在 $(NiFe)_xSiO_{2(1-x)}$ 颗粒膜中发现的巨霍尔效应(Giant Hall Effect),分析认为是由于退火后颗粒的尺寸分布改变所引起;在退火后

$Au_xSiO_{2(1-x)}$ 样品中发现的三阶非线性效应^[3],有人认为是由于样品中金颗粒的纳米团簇所导致的近场磁强而产生的集体效应所引起;在一些光学应用中,也相继观测到另外的光学特性^[4]. 同样,这种金属-绝缘体型颗粒膜的磁光特性非常值得人们去研究,例如,随着金属含量的改变,其磁光克尔效应(Magneto-optical Kers Effect, 即 MOKE)会有一些有趣的变化,然而这种金属-绝缘体颗粒膜的磁光特性却很少有人去研究. 本文报道了 $Ni_xSiO_{2(1-x)}$ 金属-绝缘体型颗粒膜的光学和磁光学特性研究的一些实验结

* 上海应用物理研究中心基金(编号 00JC14029)、国家自然科学基金(编号 69706003)和复旦大学资助项目
稿件收到日期 2000-09-15,修改稿收到日期 2000-10-26

* The project supported by the Shanghai Research Center for Applied Physics(No. 00JC14029), Fudan University and by the National Natural Science Foundation of China (No. 69706003)
Received 2000-09-15, revised 2000-10-26

果.

1 实验

用磁控溅射法制备了一系列 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜, 制备过程中, Ni 和 SiO_2 靶被分别置于两个分立的溅射枪上, 共溅射的 Ni 和 SiO_2 在旋转的 Si 衬底上淀积成膜(厚度大于 500nm). X-射线衍射分析表明样品呈现 Ni 颗粒的 fcc 结构, 样品淀积后由 XPS 和 EDX 来分析成分. 为研究退火的影响, 对部分样品作 1min 快速退火处理, 退火温度为 450C . 室温下采用入射角可全自动椭圆偏振光谱仪^[5]和全自动磁光谱仪^[6]测量样品的复介电常数谱和磁光克尔谱, 测量的能量范围为 $1.5\sim 4.5\text{eV}$.

2 结果与讨论

2.1 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜的光学特性

对 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜的复介电常数测量结果如图 1 所示. 从图中可以看出, ϵ_1 谱和 ϵ_2 谱都随着 Ni 含量的增加而发生有趣的变化. 在可见光区, 由于探测光子的能量小于带间跃迁能量, 纯 Ni 的复介电常数近似满足金属自由电子气的 Drude 模型, 其 ϵ_1 和 ϵ_2 分别取负值和正值, 即满足以下 Drude 关系式^[7]:

$$\epsilon_1 = \epsilon_\infty - \frac{\epsilon_p^2}{\epsilon^2}, \epsilon_2 = \frac{\epsilon_p^2}{\tau\omega^3} \quad (1)$$

其中 ϵ_∞ 、 ω_p 和 τ 分别为光子能量较高时电子极化子对 ϵ_1 的贡献、等离子体振荡频率和弛豫时间. 在可见光区, SiO_2 的介电常数为实数且近似为 2.13 . 而对于 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜, 随着金属含量的增加(即 x 的增加), ϵ_1 谱不仅有数值的变化, 而且在低光子能量区, 其取值发生由正到负的改变, 当 $x=0.84$ 时, 在 3.6eV 附近 $\epsilon_1=0$. 这样可以通过调整金属的含量或退火处理使 $\epsilon_1=0$. 实验中, 在 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 样品的 ϵ_2 谱图上没有峰值, 且随着 x 的增加, ϵ_2 的值单调递增.

2.2 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜的磁光特性

图 2 为在 $E=3.0\text{eV}$ 时测量样品的克尔旋转角回线, 表明所有样品在 1T 的外磁场下克尔角都达到饱和.

样品在 1T 的外磁场下的磁光克尔谱(克尔旋转角 θ_k 和椭偏率 ϵ_k) 的测量结果如图 3 所示. 从图中看出, 克尔角的值随 x 的增加而增加, 而且其峰值的位置也有移动: 在 $x=0.52$ 到 $x=0.84$, θ_k 的峰位由 2.5eV 移到 3.2eV 附近, 而 ϵ_k 的峰位则由 3.5eV 移到 4.2eV 附近.

磁性材料的磁光和光学性质有着紧密的联系. 磁光克尔角来源于介电张量的非对角元(即 $\epsilon_{xy} = \epsilon_{yx} + i\epsilon_{zy}$), 它们之间的关系为^[8]

$$\Phi_k = \theta_k - i\epsilon_k = \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon(\epsilon - 1)}} \quad (2)$$

式(2)又可以写为

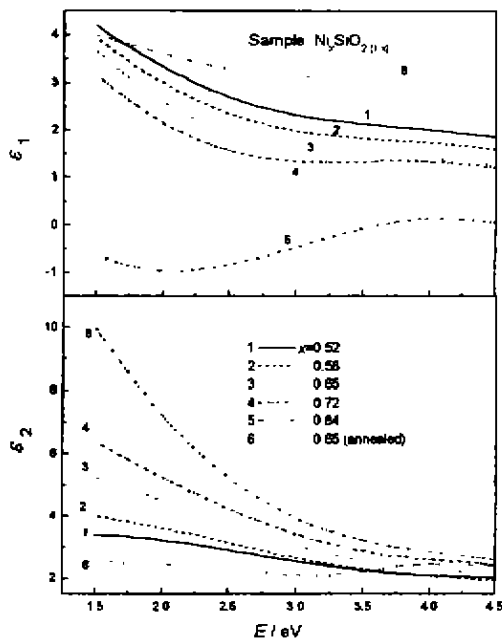


图 1 不同组份和退火条件下的 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜的复介电常数谱

Fig. 1 Measured spectra of the complex dielectric function for the $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ sample with different compositions and annealing conditions

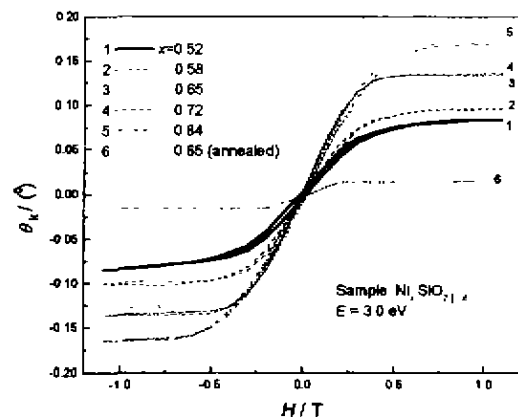


图 2 不同组份的 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜的磁滞回线

Fig. 2 Hysteresis loops for the Kerr rotation measured at 3.0eV for the $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ films with different compositions

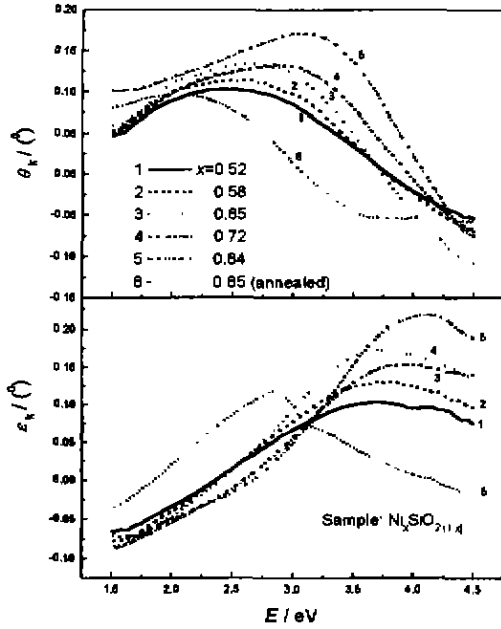


图 3 不同组份 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜的室温复克尔谱, 测量外场为 1T

Fig. 3 Measured Complex spectra of the magneto-optical Kerr effect at room temperature at the saturated magnetic field of 1T for the $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ films with different compositions

$$\theta_k = \frac{A\epsilon_{xy1} + B\epsilon_{xy2}}{C}, \quad (3)$$

$$\epsilon_k = \frac{-A\epsilon_{xy2} + B\epsilon_{xy1}}{C}.$$

其中

$$A = n(\epsilon_1 - 1) - k\epsilon_2,$$

$$B = k(\epsilon_1 - 1) + n\epsilon_2, \quad (4)$$

$$C = A^2 + B^2.$$

根据测量所得的光学常数, 计算出 ϵ_{xy} 的实部和虚部的结果如图 4 所示. 对于图 3 中克尔谱的宽峰的来源有两个: 一方面是来源于 ϵ_{xy} 的贡献, 由图 4 可以看出, 在可见光区, 随着 x 的递增, ϵ_{xy} 幅值相对较大, 尤其是 $x=0.84$ 的样品, 其 ϵ_{xy2} 谱在 3.5eV 附近有较宽、较高的峰值, 而且其 ϵ_{xy1} 的绝对值也比其它 x 较小的样品要大; 另一方面从介电常数谱测量结果中, 经过计算, 发现所有样品的 A 、 B 和 C 在较低的光子能量区都较大, 这导致了在这一区域较低的克尔角值. 然而, 随着光子能量的增加, A 、 B 和 C 逐渐减小, 从而导致了克尔角的增强.

另外, 由图 3 可看出, 对于退火后的 $x=0.65$ 样品, 其 θ_k 和 ϵ_k 的值都较退火前有所降低, 而且 θ_k 和 ϵ_k 的峰位也有红移, 分别从 2.75eV 和 3.7eV 附近,

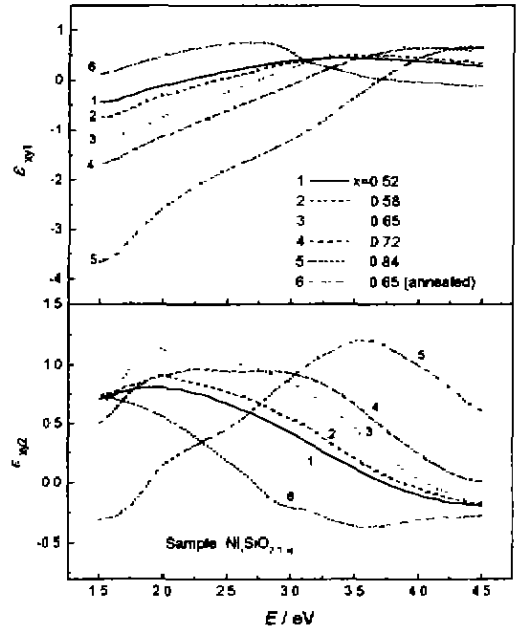


图 4 计算出的不同组份的 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜的 ϵ_{xy} 谱

Fig. 4 Calculated spectra of ϵ_{xy} for the $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ films with different compositions

移到 2.1eV 和 2.9eV 附近. 由介电常数可以看出, 退火后样品的行为更接近于绝缘体. 这个结果与前人在 $(\text{NiFe})_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 颗粒膜中观察到的现象一致^[3]. 在颗粒膜中, 退火后所引起的颗粒尺寸的改变将会显著影响颗粒膜的光学和磁光性质.

3 小结

用磁控溅射的方法制备了一系列 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 样品, 用椭圆偏振光谱仪和磁光谱仪在光子能量为 1.5~4.5eV 的可见光区研究了此金属-绝缘体型颗粒膜的光学性质和磁光性质. 在复介电常数谱上发现了一些新的特性: 在低光子能量区, ϵ_1 谱显示从正到负连续变化, 而且 3.6eV 附近的值为零. 在 $\text{Ni}_x\text{SiO}_{2(1-x)}$ 样品的复磁光克尔谱中, 其实部和虚部谱分别在 2.5~3.5eV 和 3.2~4.5eV 的光子能量区有一个较宽的峰; 而且 θ_k 和 ϵ_k 的值随 Ni 的含量的递增而增加. 对于退火后的 $x=0.65$ 样品, 其 θ_k 和 ϵ_k 的峰位则分别红移至 2.1eV 和 2.9eV. 这种在 3.0eV 附近 θ_k 和 4.0eV 附近 ϵ_k 的增强主要有两个来源, 即较高的 ϵ_{xy} 和较低的光学常数. 退火后所引起的颗粒尺寸的改变会显著影响这种金属-绝缘体型颗粒膜的光学和磁光性质. 与前人的工作相比, 本文提供了丰富的信息来理解金属-绝缘体型颗粒膜的光学和磁光特性, 而这也是以前的理论工作所未

能很好解决的. 金属-绝缘体型颗粒膜的这种光学和磁光特性在金属多层膜结构的设计和应用中应予以考虑.

REFERENCES

- [1] Zhao B, Chow J Y, Yan X. Alternating current (ac) susceptibility in Ni-SiO₂ granular film, *J. Appl. Phys.*, 1996, **79**: 6022—6024
- [2] Jing X N, Wang N, Pakhomov A B, *et al.* Effect of annealing on the giant Hall effect, *Phys. Rev. B*, 1996, **53**: 14032—14035
- [3] Pakhomov A B, Yan X, Zhao B. Giant Hall effect in percolating ferromagnetic granular metal-insulator films, *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**: 3497—3499
- [4] Sheng Ping. Theory for the dielectric function of granular composite media, *Phys. Rev. Lett.*, 1980, **45**: 60—63
- [5] Chen L Y, Feng X W, Su Y, *et al.* Design of a scanning ellipsometer by synchronous rotation of the polarizer and analyzer, *Appl. Opt.*, 1994, **33**: 1299—1304
- [6] Chen L Y, Zhou S M, Zheng Y X, *et al.* Method to measure spectra of the magneto-optical Kerr and Faraday effect, *Opt. Eng.*, 1997, **36**: 3188—3192
- [7] Wooten F. *Optical Properties of Solids*, New York: Academic Press, 1972
- [8] Argyres P N. Theory of the Faraday and Kerr effects in ferromagnetics, *Phys. Rev.*, 1955, **97**: 334—345