

# Индукцированная светом модификация магнитооптического гистерезиса в эпитаксиальной пленке катион замещенного граната железа

С. Н. Полулях<sup>+</sup>, Д. В. Авдеенко<sup>+1)</sup>, Е. Ю. Семук<sup>+</sup>, П. М. Ветошко<sup>+</sup>, В. И. Белотелов\*

<sup>+</sup>Крымский федеральный университет имени В. И. Вернадского, Физико-технический институт, 295007 Симферополь, Россия

\*Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 октября 2024 г.

После переработки 4 декабря 2024 г.

Принята к публикации 5 декабря 2024 г.

С помощью магнитооптического эффекта Фарадея зарегистрированы петли гистерезиса в (111) эпитаксиальной пленке редкоземельного граната железа при комнатной температуре. Магнитное поле приложено в плоскости пленки, обладающей магнитной анизотропией типа “легкая плоскость” в сочетании с кубической анизотропией, которая обеспечивает выход намагниченности из плоскости пленки. Экспериментально обнаружено подавление нормальной компоненты намагниченности в результате оптической накачки с длиной волны 635 нм, что связано с эффектом фотоиндуцированной магнитной анизотропии. Обнаружена зависимость эффекта от направления волнового вектора света накачки в кристалле. Обнаруженный эффект анализируется в рамках механизма фотоиндуцированного возбуждения дырочных поляронов.

DOI: 10.31857/S0370274X25010235, EDN: UDFWSI

**Введение.** Одним из активно развивающихся направлений современных исследований является управление намагниченностью магнитных материалов с помощью светового излучения. Такое управление, не связанное с тепловым действием света, оказывается возможным как за счет обратных магнитооптических эффектов, так и за счет эффектов фотоиндуцированной магнитной анизотропии (ФМА). Эти эффекты различаются механизмами воздействия света и, как следствие, обратные магнитооптические эффекты являются быстрыми, в отличие от медленных эффектов ФМА [1]. Среди материалов, демонстрирующих эффект ФМА, особое место занимают гранаты железа.

Для усиления фарадеевского вращения плоскости поляризации света в редкоземельных гранатах железа используется замещение трехвалентных додекаэдрических ионов ионами  $\text{V}^{3+}$ . Магнитные свойства редкоземельных гранатов железа, как правило, определяются трехвалентными ионами  $\text{Fe}^{3+}$ , которые занимают тетраэдрические и октаэдрические позиции структуры граната. В частности, магнитная анизотропия определяется одноионным вкладом

ионов  $\text{Fe}^{3+}$ , которые являются S-ионами со слабым спин-орбитальным взаимодействием.

При замещении трехвалентных катионов двух- или четырехвалентными катионами зарядовая компенсация приводит к образованию катионов  $\text{Fe}^{4+}$  или  $\text{Fe}^{2+}$ , соответственно. Катионы  $\text{Fe}^{2+}$  и  $\text{Fe}^{4+}$  демонстрируют сильную спин-орбитальную связь, что приводит к усилению магнитной анизотропии гранатов при гетеровалентном легировании. Изменение содержания ионов  $\text{Fe}^{4+}$  или  $\text{Fe}^{2+}$  в различных кристаллографических позициях граната под действием света является основным механизмом формирования ФМА в катион-замещенных гранатах железа.

Эффект ФМА хорошо изучен в кремний замещенном гранате железа, в котором зарядовая компенсация приводит к появлению ионов  $\text{Fe}^{2+}$ , а перераспределение этих катионов по неэквивалентным октаэдрическим позициям под действием света приводит к формированию ФМА. Основная особенность ФМА в этом случае состоит в зависимости эффекта от ориентации плоскости поляризации линейно поляризованного света [2–4].

В эпитаксиальных пленках катион-замещенного редкоземельного граната железа экспериментально обнаружен эффект фотоиндуцированного сдвига частоты ферромагнитного резонанса [5]. Зави-

<sup>1)</sup>e-mail: danila.avdeenko@mail.ru

симось сдвига резонансной частоты от ориентации плоскости поляризации линейно поляризованного света оказалась слабой. При фиксированных мощности и направлении волнового вектора оптической накачки (перпендикулярно плоскости пленки) изменение ориентации плоскости поляризации изменяло сдвиг резонансной частоты не более чем на 10%. Известны также фотомангнитные эффекты, возникающие под действием неполяризованного света [6].

При замещении додекаэдрических ионов немагнитными двухвалентными ионами  $\text{Ca}^{2+}$  в гранатах железа также возникает эффект ФМА [7, 8]. Зарядовая компенсация в этом случае приводит к появлению катионов  $\text{Fe}^{4+}$  в тетраэдрических позициях. Влияние ориентации плоскости поляризации света на эффекты ФМА в кальций замещенных гранатах железа в известных нам работах не обсуждается.

Кроме того, в известных нам работах не обсуждается зависимость эффектов ФМА от направления волнового вектора света накачки. В настоящей работе мы сообщаем о результатах исследования магнитооптических петель гистерезиса, зарегистрированных для нормальной компоненты намагниченности катион-замещенной пленки редкоземельного граната железа при направлении магнитного поля в плоскости пленки (111). При комнатной температуре экспериментально обнаружено влияние направления волнового вектора света накачки на величину выхода намагниченности из плоскости пленки. Так как величина нормальной компоненты намагниченности определяется вкладом магнитной анизотропии, то обнаруженное явление мы рассматриваем как зависимость эффекта ФМА от направления волнового вектора света накачки.

**Эксперимент.** Для проведения экспериментов использовалась пленка граната железа  $(\text{Bi, Lu, Pr})_3(\text{Fe, Ga})_5\text{O}_{12}$ . Пленка синтезирована методом жидкофазной эпитаксии на одной стороне подложки из гадолиний галлиевого граната с использованием свинцового растворителя и платинового тигля. Подложка толщиной 500 мкм ориентирована в кристаллической плоскости (111). Рентгеновский флуоресцентный анализ показал наличие в составе пленки примесей свинца, платины и кальция, которые образовались в процессе эпитаксиального синтеза. Размер образца порядка  $5 \times 5$  мм при толщине магнитной пленки 11.7 мкм.

Из экспериментов по ферромагнитному резонансу на частоте 9.66 ГГц при комнатной температуре получено, что эффективное поле одноосной анизотропии  $H_u \approx 118 \text{ Э}$ , что соответствует анизотропии типа "легкая плоскость". Эффективное поле кубиче-

ской анизотропии  $H_{K1} \approx -20 \text{ Э}$ , что соответствует направлению осей легкого намагничивания вдоль кристаллографических направлений  $\langle 111 \rangle$ . В отсутствие внешнего магнитного поля в линейно поляризованном свете наблюдается полосовая доменная структура, что свидетельствует о выходе намагниченности в доменах из плоскости пленки. При направлении намагничивающего поля в плоскости пленки доменная структура исчезает, а кубическая анизотропия приводит к выходу намагниченности из плоскости образца так, что величина проекции намагниченности на направление нормали к плоскости пленки зависит от направления поля в плоскости.

Регистрация нормальной компоненты намагниченности осуществлялась с помощью магнитооптического эффекта Фарадея при комнатной температуре. За основу взят прибор, предложенный в работе [9]. Намагничивающее поле  $\mathbf{H}$ , создаваемое с помощью скрещенных катушек Гельмгольца, направлено так, что совпадает с направлением проекции направления  $[1\bar{1}\bar{1}]$  на плоскость пленки (рис. 1).

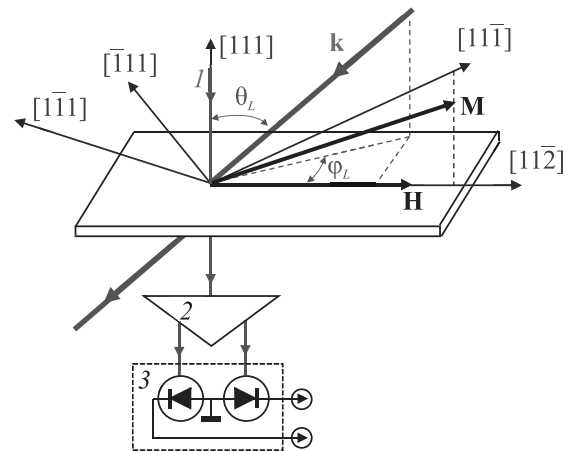


Рис. 1. (Цветной онлайн) Тригональные оси, совпадающие с кристаллографическими направлениями  $\langle 111 \rangle$  в пленке (111). Полярный  $\theta_L$  и азимутальный  $\varphi_L$  углы определяют направление волнового вектора оптической накачки  $\mathbf{k}$ . Магнитное поле  $\mathbf{H}$  лежит в плоскости пленки коллинеарно кристаллографическому направлению  $[1\bar{1}\bar{1}]$ , совпадающему с проекцией тригональной оси  $[11\bar{1}]$  на плоскость пленки. 1 – луч зондирующего лазера 2 – призма Волластона; 3 – балансный фотодетектор

Луч зондирующего лазера (мощность 0.5 мВт, длина волны 680 нм) направлен по нормали к плоскости пленки. Размер светового пятна на поверхности образца 5 мм. Фарадеевское вращение в образце приводит к повороту плоскости поляризации излуче-

ния зондирующего лазера на угол  $\alpha$ . Прошедший через образец зондирующий луч поступает на призму Волластона. Сформированные призмой Волластона два луча с ортогональной поляризацией подаются на балансный фотодетектор. Схема регистрации настроена таким образом, что регистрируемый на выходе фотодетектора сигнал  $V$ , с учетом фарадеевского вращения в образце, прямо пропорционален нормальной компоненте намагниченности образца [9].

Для изучения фотоиндуцированных эффектов использовался полупроводниковый лазер накачки с длиной волны 635 нм и регулируемой мощностью до 30 мВт. Полярный  $\theta_L$  и азимутальный  $\varphi_L$  углы определяют направление волнового вектора излучения накачки (рис. 1). Для предотвращения засветки регистрирующего фотодетектора излучением накачки, прошедшим через образец, эксперименты проводились при углах  $65^\circ < \theta_L < 90^\circ$ . При таких значениях угла  $\theta_L$  в отсутствие зондирующего излучения сигнал на выходе фотодетектора равен нулю.

В отсутствие оптической накачки петля магнитооптического гистерезиса представлена зависимостью 1 на рис. 2. Максимум нормальной компоненты на

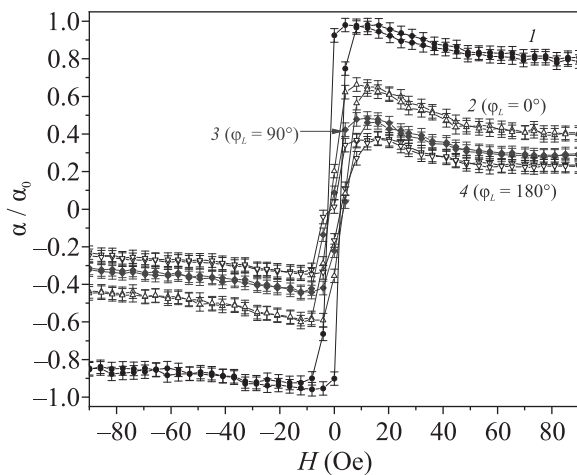


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость угла поворота плоскости поляризации зондирующего излучения  $\alpha$  от магнитного поля  $H$  в отсутствие оптической накачки (1) и при оптической накачке ( $P_L = 30$  мВт,  $\theta_L \approx 70^\circ$ ) при  $\varphi_L = 0^\circ$  (2),  $\varphi_L = 90^\circ$  (3) и  $\varphi_L = 180^\circ$  (4).  $\alpha_0$  – максимальный угол поворота плоскости поляризации в отсутствие оптической накачки

магнитности достигается в слабых, порядка 10 Э, магнитных полях, а дальнейшее увеличение поля до 100 Э приводит к медленному уменьшению намагниченности. Оптическая накачка мощностью 30 мВт при  $\theta_L \approx 70^\circ$  и  $\varphi_L = 0^\circ$  приводит к уменьшению максимальной намагниченности при том, что фор-

ма петли магнитооптического гистерезиса заметно не изменяется. Максимальное значение намагниченности линейно убывает при увеличении мощности накачки от 10 до 30 мВт (рис. 3).

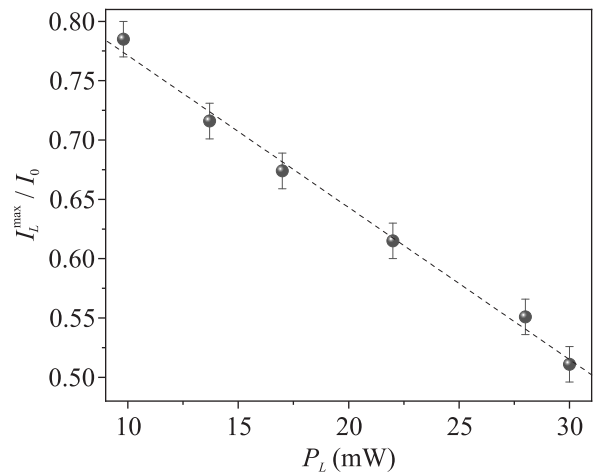


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость максимального угла поворота плоскости поляризации зондирующего излучения  $\alpha$  от мощности оптической накачки  $P_L$  при  $\theta_L \approx 70^\circ$  и  $\varphi_L = 0^\circ$ .  $\alpha_0$  – максимальный угол поворота плоскости поляризации в отсутствие оптической накачки. Пунктирная линия – результат линейной аппроксимации

Экспериментально обнаружено, что максимальный выход намагниченности из плоскости образца при перемагничивании вдоль направления  $[11\bar{2}]$  зависит от направления волнового вектора излучения накачки (зависимости 2, 3 и 4 на рис. 2). При этом полярный угол удерживался постоянным  $\theta_L \approx 70^\circ$ , чтобы избежать изменения засветки образца, а варьировался только азимутальный угол  $\varphi_L$ .

Увеличение азимутального угла  $\varphi_L$  от  $0^\circ$  до  $180^\circ$  приводит к снижению амплитуды регистрируемого сигнала (рис. 4). Дальнейшее увеличение азимутального угла ведет к восстановлению намагниченности до начального значения.

В результате специально проведенных экспериментов установлено, что фотоиндуцированное подавление выхода намагниченности из плоскости пленки слабо зависит от ориентации плоскости поляризации излучения накачки. При фиксированном направлении волнового вектора света накачки и полном повороте плоскости поляризации максимальный выход намагниченности из плоскости пленки изменяется не более, чем на 10%, что хорошо согласуется с результатами работы [5].

Установление фотоиндуцированной намагниченности происходит в течение десятков секунд после включения света накачки. После выключения накачки

ки намагниченность восстанавливается до первоначального значения так же в течение десятков секунд.

Модификация петель гистерезиса вследствие изменения  $\varphi_L$ , подобная приведенной выше, имеет место и при других фиксированных значениях полярного угла в интервале допустимых значений  $65^\circ < \theta_L < 90^\circ$ . Если, наоборот, фиксирован азимутальный угол  $\varphi_L$ , то изменение полярного угла также приводит к изменению размаха петли по вертикали. Однако, величина изменения в этом случае заметно меньше, что, по-видимому, связано с меньшим диапазоном изменения направления волнового вектора накачки. Экспериментальные результаты воспроизводятся при направлении внешнего магнитного поля вдоль проекции на плоскость любой из неэквивалентных тригональных осей.

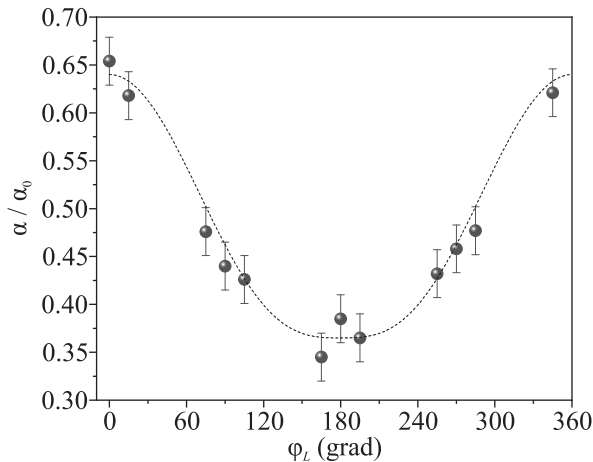


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость максимального угла поворота плоскости поляризации зондирующего излучения  $\alpha$  от азимутального угла  $\varphi_L$  при  $P_L = 30$  мВт и  $\theta_L \approx 70^\circ$ .  $\alpha_0$  – максимальный угол поворота плоскости поляризации в отсутствие оптической накачки. Пунктирная линия построена для удобства восприятия

**Обсуждение результатов.** Величина выхода намагниченности из плоскости образца определяется конкуренцией поля размагничивания, намагничивающего поля и эффективных полей магнитной анизотропии [10]. Эффективное поле одноосной анизотропии, включающее поле размагничивания и поле одноосной анизотропии, а также намагничивающее поле стремятся удержать намагниченность в плоскости образца. Отрицательное по величине эффективное поле кубической анизотропии стремится вывести намагниченность из плоскости пленки, если направление намагничивающего поля совпадает с проекцией направления  $\langle 111 \rangle$  на плоскость пленки.

Так как размер светового пятна зондирующего лазера существенно больше периода полосовой

доменной структуры в отсутствие внешнего поля, интегральное фарадеевское вращение плоскости поляризации света в размагниченном состоянии равно нулю. При увеличении внешнего магнитного поля растет вклад доменов, в которых проекция намагниченности на плоскость пленки совпадает с направлением поля, что приводит к росту угла  $\alpha$ . Дальнейшее увеличение магнитного поля приводит к исчезновению доменной структуры и последующему подавлению выхода намагниченности из плоскости однородно намагниченной пленки. В полях, соответствующих области насыщения петель гистерезиса (рис. 2) доменная структура экспериментально не наблюдается. Максимум фарадеевского вращение  $\alpha$  наблюдается в диапазоне полей, соответствующих переходу образца из полидоменного в однородно намагниченное состояние.

Учитывая медленное изменение размаха петли магнитооптического гистерезиса в результате действия оптической накачки, наблюдаемые эффекты мы относим к ФМА. В нашем случае эффекты ФМА состоят в фотоиндуцированном подавлении вклада в анизотропию, ответственного за формирование нормальной компоненты намагниченности. Заметим, что фотоиндуцированная модификация петли гистерезиса (рис. 1) состоит не только в подавлении размаха петли по вертикали, но и в увеличении разницы между максимальным значением нормальной намагниченности и ее величиной при дальнейшем увеличении поля. Чем сильнее фотоиндуцированное подавление анизотропного вклада, тем эффективнее плоскостное магнитное поле уменьшает выход намагниченности из плоскости пленки.

Явление ФМА в гранатах наиболее хорошо изучено для случая ионов  $\text{Fe}^{2+}$  [2–4]. Например в  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}:\text{Si}$  ионы  $\text{Si}^{4+}$  замещают тетраэдрические ионы  $\text{Fe}^{3+}$ , а зарядовая компенсация приводит к появлению  $\text{Fe}^{2+}$  в октаэдрических позициях. Октаэдрические позиции обладают тригональной симметрией. Катионы  $\text{Fe}^{2+}$ , обладающие сильной спин-орбитальной связью, приводят к формированию одноосной магнитной анизотропии так, что выделенная ось совпадает с направлением локальной тригональной оси. В структуре граната существует четыре неэквивалентные октаэдрические позиции, различающиеся направлением тригональной оси. В отсутствие света каждая из неэквивалентных октаэдрических позиций содержит одинаковое число катионов  $\text{Fe}^{2+}$ . Совокупная одноосная анизотропия октаэдрических позиций приводит к кубической симметрии граната.

Действие света на ион  $\text{Fe}^{2+}$  состоит в отсоединении избыточного, по отношению к  $\text{Fe}^{3+}$ , электрона и переходе этого электрона в возбужденное состояние, детальное описание которого авторам работы [3] не представляется необходимым. Такой процесс эквивалентен фотоиндуцированному переходу  $\text{Fe}^{2+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$ . Эффективное сечение взаимодействия света с электроном зависит от угла между направлением вектора электрического поля световой волны и локальной тригональной осью [3]. Это обусловлено тем, что волновая функция возбуждаемого электрона не является сферически симметричной. Время жизни электрона в возбужденном состоянии пренебрежимо мало, а обратные  $\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{2+}$  переходы происходят так, что катион  $\text{Fe}^{2+}$  может равновероятно образоваться в любой неэквивалентной октаэдрической позиции. В результате заселенность разных октаэдрических позиций ионами  $\text{Fe}^{2+}$  оказывается зависящей от ориентации плоскости поляризации линейно поляризованного света в кристалле. Заселенность одних октаэдрических позиций ионами  $\text{Fe}^{2+}$  оказывается больше, чем в отсутствие света, а других – меньше. Различные тригональные оси становятся неэквивалентными осями легкого намагничивания, в чем, собственно, и состоит ФМА.

Перераспределение ионов с сильной спин-орбитальной связью по неэквивалентным позициям, при сохранении общего числа таких ионов, должно приводить к уменьшению выхода намагниченности из плоскости при одних направлениях накачки и увеличению при других. Такое поведение плохо согласуется с результатами наших экспериментов, в которых наблюдается только уменьшение выхода намагниченности из плоскости при различных направлениях волнового вектора оптической накачки.

Несколько иной механизм формирования ФМА реализуется в гранатах железа с избытком двухвалентного кальция. Зарядовая компенсация приводит к образованию ионов  $\text{Fe}^{4+}$  в тетраэдрических позициях. В силу сильного спин-орбитального взаимодействия ионы  $\text{Fe}^{4+}$  приводят к формированию одноосной магнитной анизотропии. Для различных тетраэдрических позиций выделенные оси направлены вдоль различных тетрагональных осей (направлений [100]). Сумма этих вкладов приводит к кубической анизотропии кристалла [7].

При комнатной температуре действие света приводит к формированию дырочного полярона, что эквивалентно фотоиндуцированному переходу  $\text{Fe}^{4+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$ . С учетом конечного времени жизни полярона, действие света состоит в эффективном уменьшении концентрации ионов  $\text{Fe}^{4+}$  и соответствующему уве-

личению концентрации ионов  $\text{Fe}^{3+}$ . Вследствие изменения концентрации ионов с сильной орбитальной связью формируется ФМА [7, 8].

Рассмотренный механизм, связанный с ионами  $\text{Fe}^{4+}$ , может быть применен к анализу наших экспериментальных результатов, полученных в образце граната железа с примесями кальция. Предположим, что динамика поляронов является анизотропной, т.е. будем полагать, что эффективность возбуждения полярона зависит от направления его квазиимпульса в кристалле. Фотоиндуцированный полярон получает импульс от фотона световой волны. Так как импульс фотона  $\hbar\mathbf{k}$  зависит от волнового вектора  $\mathbf{k}$  ( $\hbar$  – постоянная Планка), то и вероятность фотоиндуцированного возбуждения полярона должна зависеть от направления волнового вектора световой волны  $\mathbf{k}$ . В результате заселенность различных тетраэдрических позиций ионами  $\text{Fe}^{4+}$  оказывается разной и суммарный вклад в анизотропию при фиксированном  $\mathbf{k}$  приводит к неэквивалентности осей легкого намагничивания, совпадающих с тригональными осями. Таким образом, механизм, связанный с фотоиндуцированными переходами  $\text{Fe}^{4+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$ , представляется предпочтительным для объяснения наших экспериментов.

При этом для несферических волновых функций возбуждаемых электронов эффективное сечение взаимодействия должно зависеть от направления вектора электрического поля световой волны. Слабая зависимость наблюдаемых эффектов от ориентации плоскости поляризации линейно поляризованного света свидетельствует о незначительном отклонении формы волновых функций от сферической для возбуждаемых светом электронов.

**Заключение.** С помощью магнитооптического эффекта Фарадея зарегистрированы петли магнитного гистерезиса в катион-замещенной (111) пленке редкоземельного граната железа при комнатной температуре. Несмотря на одноосную анизотропию типа “легкая плоскость” и направление внешнего магнитного поля в плоскости пленки, кубическая магнитная анизотропия приводит к выходу намагниченности из плоскости пленки. Экспериментально обнаружено подавление выхода намагниченности из плоскости пленки под действием оптической накачки. Степень подавления зависит от направления волнового вектора световой волны накачки относительно осей кристалла. Показано, что наблюдаемые эффекты обусловлены фотоиндуцированной магнитной анизотропией. Предложен механизм, состоящий в фотоиндуцированном возбуждении дырочных поляронов, что приводит к эффективному уменьшению концентрации ионов  $\text{Fe}^{4+}$ , обладающих сильной



спин-орбитальной связью и соответствующим увеличением концентрации ионов  $\text{Fe}^{3+}$ . Предполагается, что эффективность фотоиндуцированного возбуждения поляронов зависит от направления волнового вектора световой волны относительно локальной оси симметрии позиции, занятой ионом  $\text{Fe}^{4+}$ , что, в конечном итоге, приводит к неэквивалентности осей легкого намагничивания, совпадающих с различными кристаллографическими направлениями  $\langle 111 \rangle$ .

**Финансирование работы.** Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант # 23-62-10024.

**Конфликт интересов.** Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. A. Kirilyuk, A. Kimel, and T. Rasing, *Phil. Trans. R. Soc. A* **369**, 3631 (2011).
2. R. W. Teale and D. W. Temple, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 904 (1967).
3. R. Alben, E. M. Gyorgy, J. F. Dillon, and J. P. Remeika, *Phys. Rev. B* **5**, 2560 (1972).
4. D. G. Makarov, O. V. Tychko, and V. F. Kovalenko, *J. Alloys Compd.* **369**, 222 (2004).
5. S. N. Polulyakh, E. Yu. Semuk, A. K. Zvezdin, V. N. Berzhanskii, and V. I. Belotelov, *JETP Lett.* **115**, 196 (2022).
6. В. Ф. Коваленко, Э. Л. Нагаев, *УФН* **148**(4), 561 (1986).
7. S. Batra, A. Lehmann-Szweykowski, and P. E. Wigen, *J. Appl. Phys.* **61**, 3274 (1987).
8. M. Pardavi-Horvath, P. E. Wigen, and G. Vertesy, *J. Appl. Phys.* **63**, 3110 (1988).
9. P. M. Vetoshko, V. B. Volkovoy, V. N. Zalogin, and A. Yu. Toporov, *J. Appl. Phys.* **70**, 6298 (1991).
10. М. В. Валейко, П. М. Вегошко, А. Я. Перлов, А. Ю. Топоров, *ФТТ* **36**, 3067 (1994)