

Магнитооптическое исследование гольмиевого феррита-граната $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

А.М. Калашникова¹, В.В. Павлов¹, А.В. Kimmel², А. Kirilyuk², Th. Rasing², Р.В. Писарев¹

¹Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, г. Санкт-Петербург, 194021, Россия
E-mail: kalashnikova@mail.ioffe.ru

²Radboud University Nijmegen, Institute for Molecules and Materials, Nijmegen 6525AJ, The Netherlands

Статья поступила в редакцию 10 мая 2012 г.

Объемный гольмиевый феррит-гранат $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ является кубическим ферромагнетиком с температурой Кюри $T_C = 567$ К и точкой компенсации намагниченности T_{comp} в области 130–140 К. В работе представлены результаты магнитооптического исследования эпитаксиальной пленки гольмиевого феррита-граната $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ толщиной ~ 10 мкм, выращенной на подложке типа (111) гадолиний-галлиевого граната $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. Особенностью данной структуры является близость параметров объемного материала, из которого выращена пленка, и подложки. Изучены температурные и полевые зависимости эффекта Фарадея, а также температурная зависимость доменной структуры в нулевом поле. Установлено, что точка компенсации для данной структуры составляет 127 К. Показано, что температурная зависимость характерного размера доменной структуры имеет расхождимость в этой точке. На основании полученных результатов установлено, что магнитная анизотропия этого материала определяется одноосным и кубическим вкладами, причем каждый из них характеризуется различной температурной зависимостью. Сложная форма петель гистерезиса и резкая перестройка доменной структуры при изменении температуры указывают на наличие переходов из коллинеарной в неколлинеарную фазу. Была также исследована генерация второй оптической гармоники под действием лазерных импульсов длительностью 100 фс и центральной энергией фотона $E = 1,55$ эВ. Электродипольный вклад в генерацию второй гармоники, как кристаллографический, так и магнитный, был надежно зарегистрирован, несмотря на малое рассогласование параметров пленки феррита-граната и подложки.

Об'ємний гольмієвий ферит-гранат $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ є кубічним феримагнетиком з температурою Кюрі $T_C = 567$ К і точкою компенсації намагніченості T_{comp} в області 130–140 К. В роботі представлено результати магнітооптичного дослідження епітаксіальної плівки гольмієвого ферит-гранату $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ з товщиною ~ 10 мкм, яку вирощено на підкладці типу (111) гадоліній-галієвого гранату $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. Особливістю цієї структури є близькість параметрів об'ємного матеріалу, з якого вирощено плівку, і підкладки. Вивчено температурні та польові залежності ефекту Фарадея, а також температурна залежність доменної структури в нульовому полі. Встановлено, що точка компенсації для цієї структури складає 127 К. Показано, що температурна залежність характерного розміру доменної структури має розбіжність в цій точці. На підставі отриманих результатів встановлено, що магнітна анізотропія цього матеріалу визначається одноосним і кубічним вкладами, причому кожен з них характеризується різною температурною залежністю. Складна форма петель гістерезису і різка перебудова доменної структури при зміні температури вказують на наявність переходів з колінеарної в неколінеарну фазу. Було також досліджено генерацію другої оптичної гармоніки під дією лазерних імпульсів тривалістю 100 фс і центральною енергією фотона $E = 1,55$ еВ. Електродипольний вклад в генерацію другої гармоніки, як кристаллографічний, так і магнітний, був надійно зареєстрований, незважаючи на мале розузгодження параметрів плівки ферит-гранату та підкладки.

PACS: 75.50.Gg Ферромагнетики;

78.20.-e Оптические свойства массивных материалов и тонких пленок;

42.65.Ky Частотные преобразования, генерация гармоник, включая гармоники более высокого порядка.

Ключевые слова: гольмиевый феррит-гранат, ферромагнетики, эпитаксиальные пленки, магнитооптическое исследование.

1. Введение

Большое многообразие магнитоупорядоченных материалов можно условно разбить на три группы — ферромагнетики, антиферромагнетики и ферримагнетики [1–3]. К первой группе относятся, в первую очередь, ферромагнитные металлы: железо, кобальт и никель, а также их многочисленные сплавы, в которых доминирующее прямое обменное взаимодействие между магнитными атомами является ферромагнитным. Некоторые металлы, например такие, как хром и марганец, являются антиферромагнетиками, и в них магнитное упорядочение определяется антиферромагнитным взаимодействием. Однако большую часть антиферромагнетиков составляют соединения переходных и редкоземельных металлов в виде оксидов и халькогенидов, где обменное взаимодействие является косвенным. Представители третьей группы — ферримагнетики — обладают свойствами как ферро-, так и антиферромагнетиков. Типичными представителями ферримагнетиков среди металлов являются сплавы переходных и редкоземельных металлов, которые образуют неэквивалентные подрешетки, и взаимодействие между ними является антиферромагнитным. Примерами диэлектрических ферримагнетиков являются ферриты со структурой шпинели и граната [2,4], а также гексаферриты. Различие в величине намагниченности неэквивалентных подрешеток даже при антиферромагнитном взаимодействии приводит к возникновению результирующей спонтанной намагниченности, как это имеет место в ферромагнетиках.

Однако по своим многим магнитным и даже другим физическим свойствам ферримагнетики и ферромагнетики радикально различаются. Яркой особенностью некоторых ферримагнетиков является наличие температурной точки магнитной компенсации T_{comp} , в которой намагниченности разных подрешеток, демонстрирующие разные температурные зависимости, компенсируют друг друга и, как следствие, полная намагниченность среды обращается в ноль. Поведение ферримагнетика в магнитном поле, особенно вблизи T_{comp} , оказывается значительно более сложным [5–8], чем поведение ферромагнетиков или антиферромагнетиков [3] в магнитном поле. Особо следует отметить возникновение неколлинеарных фаз в магнитном поле [5–8]. Теоретические расчеты показали, что вблизи T_{comp} , и даже в более широком температурном интервале, необычайно важным фактором, усложняющим магнитную фазовую диаграмму температура–поле, является магнитокристаллографическая анизотропия [6,8]. Эти и некоторые другие теоретические исследования ферримагнетиков вблизи T_{comp} послужили основой для анализа результатов экспериментальных работ по кристаллам гадолиниевого и гольмиевого

ферритов-гранатов [9,11–14] и по некоторым другим магнитным гранатам с точкой компенсации [10,15–18].

В настоящей статье представлены результаты магнитооптического исследования эпитаксиальной пленки гольмиевого феррита-граната $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, для которой можно ожидать существенное отличие ряда свойств от объемного кристалла. $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ является ферримагнетиком с температурой Кюри $T_C = 567$ К. Ионы железа Fe^{3+} занимают две неэквивалентные кристаллографические позиции, и их магнитные моменты связаны антиферромагнитно. За счет разного числа ионов железа в этих двух позициях суммарный момент подрешеток железа отличен от нуля. Ненулевой магнитный момент подрешетки гольмия Ho^{3+} , возникающий за счет обменного взаимодействия с ионами железа, антипараллелен суммарной намагниченности подрешеток железа. Вследствие различных температурных зависимостей намагниченностей подрешеток железа и гольмия гольмиевый феррит-гранат имеет точку температурной компенсации суммарной намагниченности T_{comp} , которая для объемного гольмиевого феррита-граната лежит в диапазоне 130–140 К [19]. Этот материал, как представитель семейства ферритов-гранатов, обладает рядом интересных физических свойств, таких как большая магнитострикция, мультиферройность, т.е. наличие двух или более параметров порядка, и некоторые другие [20–22].

Исследования были проведены на тонкой пленке гольмиевого феррита-граната, выращенной на подложке гадолиний-галлиевого граната с ориентацией (111). Изучены температурная и полевая зависимости магнитооптического эффекта Фарадея, а также температурная зависимость доменной структуры в диапазоне температур 24–312 К. Исследование магнитооптического эффекта Фарадея позволило определить температуру компенсации для исследуемой пленки, а также выявить температурные изменения магнитной кристаллографической анизотропии и возникновение неколлинеарной фазы. Анализ температурной зависимости характерного размера доменной структуры показал, что она имеет расхожимость в точке компенсации. Также были исследованы кристаллографический и магнитный вклады в генерацию второй оптической гармоники на длине волны накачки 800 нм.

2. Образцы и методика

Образцы представляли собой односторонние тонкие пленки гольмиевого феррита-граната $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ толщиной около 10 мкм, выращенные методом жидкофазной эпитаксии на (111)-подложках гадолиний-галлиевого граната $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (ГГГ). Исследование спектра поглощения показало, что в ближней инфракрасной и части видимой области спектра пленка обладает прозрачностью около 20%, а интенсивное поглощение

начинается при энергиях фотона порядка 3 эВ, что находится в согласии с известными в литературе данными [2].

Для изучения температурных и полевых зависимостей процессов намагничивания пленки гольмиевого феррита-граната мы использовали магнитооптический эффект Фарадея. Этот эффект заключается в повороте плоскости поляризации линейно-поляризованного света, пропорциональном компоненте намагниченности вдоль волнового вектора. В качестве источника света использовали титан-сапфировый лазер с длиной волны 800 нм и длительностью импульсов 100 фс. Постоянное магнитное поле различной величины прикладывали либо вдоль нормали к пленке (геометрия 1), либо в плоскости пленки (геометрия 2). В первом случае свет распространялся вдоль нормали к пленке. Во втором случае угол падения света составлял 20°. Таким образом мог быть исследован эффект Фарадея, пропорциональный как компоненте намагниченности, направленной вдоль нормали, так и лежащей в плоскости пленки.

Температурная зависимость доменной структуры была исследована в нулевом магнитном поле. Изображения доменов при различных температурах получены с использованием техники магнитооптической микроскопии [23–25]. Для этих целей лампу накаливания использовали как источник света, а изображения регистрировали с помощью ПЗС (CCD)-камеры.

Для исследования генерации второй оптической гармоники (ГВГ) была использована экспериментальная методика, схематически показанная на рис. 5(а). Исследование ГВГ проведено в геометрии на пропускание. В качестве излучения накачки использовались 100 фс импульсы с центральной длиной волны $\lambda_1 = 800$ нм ($E_1 = 1,55$ эВ), генерируемые титан-сапфировым лазером. Излучение накачки было линейно поляризовано, причем азимутальный угол поляризации θ мог варьироваться в пределах 0°–360° посредством поворота полуволновой фазовой пластинки. В качестве $\theta = 0^\circ$ нами была принята вертикальная поляризация излучения. Остаточное излучение на фундаментальной длине волны, прошедшее через образец, блокировалось с помощью фильтра. Интенсивность $I^{2\omega}$ излучения на удвоенной частоте ($\lambda_2 = 400$ нм, $E_2 = 3,1$ эВ), т.е. сигнала ГВГ, регистрировали с помощью фотоумножителя после прохождения через анализатор, ось пропускания которого была либо вертикальна ($\psi = 0^\circ$), либо горизонтальна ($\psi = 90^\circ$). Постоянное магнитное поле было направлено горизонтально в плоскости образца. Для определения особенностей процесса генерации второй гармоники была исследована зависимость сигнала ГВГ от азимута линейной поляризации анализатора. Исследования проводили как в магнитном поле, так и без него.

Для всех исследований образец был помещен в оптический криостат с продувкой газообразным гелием, температура образца в котором могла изменяться в широком диапазоне от 20 до 320 К.

3. Температурная зависимость процессов намагничивания

Кристаллическая структура объемных гранатов является центросимметричной кубической и характеризуется кубической магнитной кристаллографической анизотропией. Однако тонкие пленки ферритов-гранатов, выращенные методом жидкофазной эпитаксии на подложках со структурой граната, в зависимости от химического состава пленки и рассогласования параметров подложки и материала пленки, могут характеризоваться магнитной кристаллографической анизотропией типа «легкая ось», «легкая плоскость» или даже ромбической магнитной анизотропией [2,24]. Кубический гольмиевый феррит-гранат имеет параметр элементарной ячейки 1,2375(3) нм, а параметр подложки ГГ равен 1,2377(4) нм [19], т.е. различие в параметрах крайне мало. Поэтому нельзя было заранее предсказать с уверенностью, какого типа анизотропия будет преобладать в такой пленке.

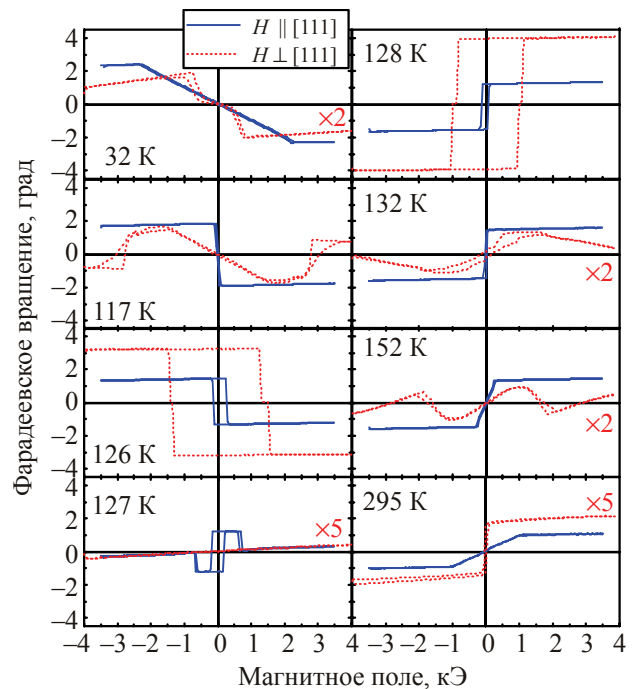


Рис. 1. Фарадеевское вращение на длине волны $\lambda = 800$ нм как функция внешнего магнитного поля, измеренное при нескольких температурах в двух различных геометриях. Сплошные линии: магнитное поле и волновой вектор света параллельны нормали образца (геометрия 1). Пунктирные линии: магнитное поле — в плоскости образца, угол падения для света составляет 20° (геометрия 2). Для ясности представления величина фарадеевского вращение, измеренного в геометрии 2 при температурах $T = 32, 132, 152$ К и 127, 295 К, увеличена в два и в пять раз соответственно.

Чтобы изучить процесс намагничивания пленки гольмиевого феррита-граната, были измерены полевые зависимости магнитооптического эффекта Фарадея при разных температурах. Результаты для нескольких значений температуры показаны на рис. 1. Отметим, что эффект Фарадея в видимой и инфракрасной областях определяется конкуренцией вкладов намагниченностей октаэдрической и тетраэдрической подрешеток трехвалентного железа Fe^{3+} [26]. Следовательно, величина фарадеевского вращения позволяет определить величину проекции намагниченности подрешеток железа на волновой вектор света. Это, в частности, позволяет определить из приведенных данных температуру компенсации T_{comp} . Как видно на рис. 1, для температур 126–128 К в этом интервале происходит переверт кривых гистерезиса. Таким образом, точка компенсации $T_{\text{comp}} = 127$ К для изучаемой пленки (см. также рис. 2(a)). Ниже этой температуры суммарная намагниченность подрешеток железа направлена против приложенного магнитного поля, так как намагниченность подрешетки гольмия преобладает и суммарная намагниченность направлена вдоль нее. Выше T_{comp} ситуация меняется на противоположную. Следует отметить, однако, что при 127 К эффект Фарадея в насыщении близок к нулю (см. рис. 2(a)), что, очевидно, означает уменьшение компоненты намагниченности железа, направленной вдоль нормали к пленке при этой температуре. Форма кривой гистерезиса при

этой температуре имеет сложный характер, возможная причина которого обсуждается ниже.

Как видно на рис. 1, характер кривых намагничивания, измеренных как для поля, направленного вдоль нормали, так и для поля, лежащего в плоскости пленки, испытывает значительные изменения при изменении температуры. Рассмотрим сначала петли гистерезиса, полученные в геометрии 1 (поле направлено вдоль нормали к образцу). Когда температура близка к точке компенсации (диапазон 117–132 К), кривые намагничивания имеют форму, характерную для пленки с магнитной кристаллографической анизотропией типа «легкая ось». На рис. 2(б) приведены зависимости коэрцитивного поля H_c от температуры, определенного из кривых намагничивания в этом диапазоне. Коэрцитивность растет при приближении к T_{comp} , что характерно для ферримагнетиков, имеющих температурную точку компенсации. При температурах ниже 117 К характер кривых намагничивания свидетельствует о том, что поля одноосной ростовой анизотропии и кубической анизотропии, характерной для объемных ферритов-гранатов, становятся сравнимы друг с другом. При температурах выше 132 К роль одноосной анизотропии также уменьшается. На рис. 2(б) показана температурная зависимость поля насыщения H_s , требуемого для выстраивания намагниченности вдоль оси (111), от температуры. Это поле растет как при уменьшении, так и при увеличении температуры по отношению к T_{comp} . Таким образом, наблюдается сильный рост эффективного поля одноосной анизотропии в области T_{comp} . Следует отметить, что сильные температурные изменения эффективного поля магнитной анизотропии, сопровождающиеся ориентационными фазовыми переходами, характерны для пленок ферритов-гранатов различного состава (см., например, [27]).

Изучение кривых намагничивания в поле, направленном в плоскости (геометрия 2), позволяет получить дополнительную информацию о температурных изменениях анизотропии. Так, при понижении температуры ниже комнатной форма кривых намагничивания становится достаточно сложной. Например, при $T = 117$ К форма полевой зависимости соответствует процессу намагничивания перпендикулярно легкой оси только в диапазоне полей от -2 до 2 кЭ. При более высоких значениях поля наблюдаются индуцированный магнитным полем переход, который мы связываем с возникновением неколлинеарной фазы, предсказанной для ферримагнетика с одноосной и кубической анизотропией [5–8]. Важно заметить, что в поле, приложенном вдоль нормали к пленке, только в непосредственной близости от точки компенсации форма кривых намагничивания свидетельствует о наличии индуцированного полем перехода в неколлинеарную фазу (см. рис. 1, $T = 127$ К). Если же поле приложено в плоскости пленки, то температурный диапазон, в котором

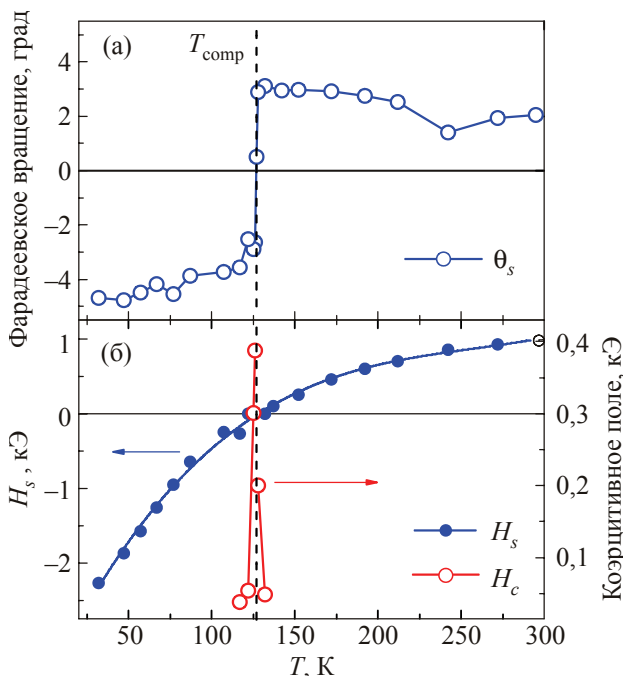


Рис. 2. Величина фарадеевского вращения θ_s , измеренная в насыщении в геометрии 1 (магнитное поле направлено вдоль нормали к пленке), как функция температуры (а). Температурные зависимости поля насыщения H_s (заполненные символы) и коэрцитивного поля H_c (пустые символы) в той же геометрии (б).

такие переходы, предположительно, возникают, необычайно широк и составляет ~20–170 К. Следует отметить, что в [9] сообщалось о детальном исследовании процессов намагничивания в объемных образцах гольмиевого феррита-граната (110) магнитооптическим методом. В случае объемного феррита-граната возникновение неколлинеарной фазы и опрокидывание подрешеток наблюдалось в узком температурном диапазоне вблизи точки компенсации в полях порядка нескольких десятков кЭ [9]. Мы связываем существенное расхождение между результатами, полученными нами для тонкой пленки, и результатами в [9] с более сложной анизотропией тонкой пленки, в которой кроме кубической существенную роль играет ростовая анизотропия и возможные напряжения. Так, известно, что величины критических полей и температурный диапазон, в которых возникает переход из коллинеарной в неколлинеарную фазы, претерпевают существенные изменения при отклонении внешнего магнитного поля от легкой оси образца (см., например, обзор [7]).

4. Температурная зависимость доменной структуры

Доменная структура в пленке гольмиевого феррита-граната была исследована в экспериментах на прохождение, в которых контраст между доменами с противоположной ориентацией намагниченности формировался за счет магнитооптического эффекта Фарадея [23,24]. Исследование проводилось в отсутствие магнитного поля в зависимости от температуры, изменения которой приводили к спонтанным изменениям намагниченности и магнитной анизотропии, и, как следствие, к изменениям доменной структуры. Характерные изображения доменов показаны на рис. 3. При низких температурах (24 К на рис. 3), когда суммарная намагниченность и анизотропия велики, домены характеризуются малыми размерами и четкой ориентацией доменных границ вдоль трех направлений, различающихся на $60^\circ/120^\circ$, что характерно для плоскости типа (111). Наличие достаточно четкого контраста и доменов трех типов говорит о том, что намагниченность, с одной стороны, выходит из плоскости пленки, и, с другой стороны, не направлена по нормали к пленке, т.е. наиболее вероятной ориентацией намагниченности являются оси типа [111], не направленные по нормали к пленке. Это находится в хорошем согласии с нашими заключениями, сделанными на основе исследования кривых намагничивания. Отметим, что, если бы намагниченность при этой температуре лежала в плоскости пленки, то только доменные стенки могли бы быть визуализированы в данной экспериментальной геометрии. Температурная зависимость характерного размера домена и количества доменных стенок на единицу длины показаны на рис. 4.

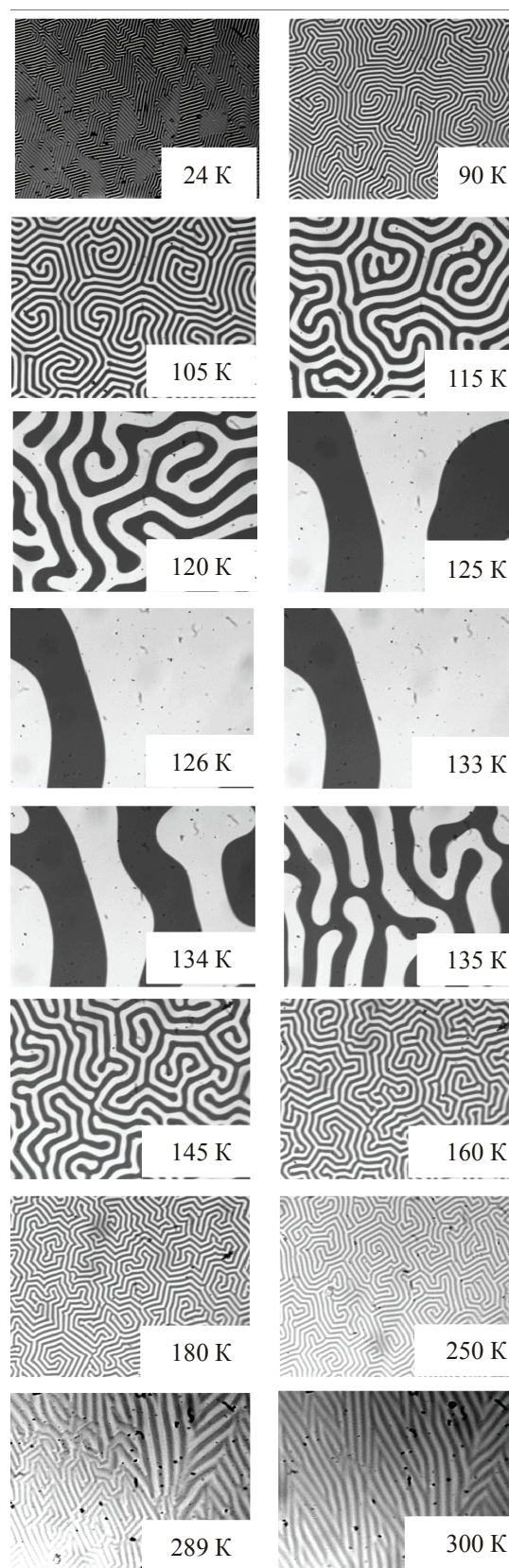


Рис. 3. Изображения доменной структуры в (111)-пленке $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ при различных температурах, полученные методом магнитооптической микроскопии на пропускание в нулевом магнитном поле. Продольный размер одного изображения составляет ~1 мм.

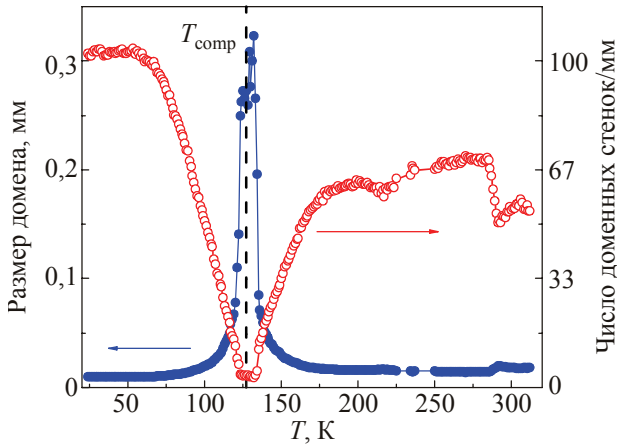


Рис. 4. Температурные зависимости размера доменов (●) и количества доменных стенок (○) на единицу длины.

По мере повышения температуры и приближении к точке компенсации домены укрупняются и приобретают типичную лабиринтную форму, что говорит о возрастании роли кристаллографической анизотропии типа «легкая ось», в согласии с результатами, представленными в разд. 3. В области от 123 до 134 К доменная структура сильно укрупнена и практически не изменяется. Можно говорить, что в этой области температур размер домена неограниченно возрастает (см. рис. 4). При изменении температуры всего на один кельвин от 134 до 135 К доменная структура перестраивается скачком. Следует отметить, что в области вблизи точки компенсации предсказано существование неколлинеарной магнитной фазы даже в нулевом внешнем магнитном поле [6,8]. Таким образом, резкое изменение доменной структуры при 134–135 К можно связать с фазовым переходом в нулевом магнитном поле из неколлинеарной в коллинеарную магнитные фазы.

При дальнейшем повышении температуры лабиринтная структура измельчается. Рисунок 3 показывает сосуществование двух типов доменов при $T = 289$ К, а при более высокой температуре доменная структура приобретает полосовой характер. Эти изменения связаны с температурными изменениями намагниченности и магнитной анизотропии. Как видно на рис. 4, изменения характера доменной структуры отражаются и в температурной зависимости характерного размера домена.

5. Генерация второй оптической гармоники

Генерация второй оптической гармоники кристаллографической и магнитной природы была обнаружена во многих магнитных материалах. Было показано, что это явление может служить как дополнительным, так и альтернативным методом изучения электронных и магнитных структур, тонких пленок, поверхностных и

интерфейсных магнитных состояний, ферромагнитных и антиферромагнитных доменов и др. [28–31]. Кристаллическая структура объемных гранатов является centrosymmetric кубической, что накладывает строгий запрет на генерацию электродипольной второй оптической гармоники [32]. Тем не менее вторая оптическая гармоника наблюдалась в тонких пленках ферритов-гранатов различных составов, выращенных на подложках гадолиний-галлиевого граната, а также на подложках других гранатов [33–37]. Нам не известно о сообщениях о наблюдении ГВГ в объемных ферритах-гранатах. Основным механизмом возникновения электродипольной второй гармоники считается искажение кубической структуры пленки за счет рассогласования параметров элементарных ячеек подложки и материала, из которого выращена пленка. Рассогласование параметров приводит к тому, что с магнитной точки зрения пленка теряет кубическую анизотропию, а результаты по второй гармонике свидетельствуют еще и о потере центра инверсии в пленке [33,34].

Однако следует заметить, что целенаправленное систематическое исследование механизма потери центра инверсии в пленках гранатов не проводилось. Эксперименты показывают, что увеличение рассогласования приводит к росту интенсивности второй гармоники. Понижение симметрии подложки, например от высокосимметричного типа (111) до типа (210), также приводило к росту интенсивности гармоники [33,34]. Важную роль играет химический состав пленки феррита-граната — более интенсивные сигналы, как правило, наблюдались в пленках сложного химического состава, когда в эквивалентных кристаллографических позициях находились различные атомы.

На рис. 5(в) приведены азимутальные зависимости сигнала ГВГ, измеренные при $T = 50$ К при угле падения $\alpha = 0^\circ$ для излучения на фундаментальной частоте. Очевидно, что ГВГ наблюдается в исследуемой пленке гольмиевого феррита-граната, несмотря на указанную ранее относительную простоту ее состава и малость рассогласования параметров решетки гольмиевого феррита-граната с параметрами подложки. Для того чтобы проанализировать наблюдаемую анизотропию сигнала ГВГ, мы использовали феноменологический подход, подробно описанный, например, в [28,34]. Такой анализ, выполняемый в приближении бездиссипативной среды [32,38], основан на том, что симметрия материала определяет симметрию тензора, описывающего нелинейную оптическую восприимчивость. Кристаллографический вклад в генерацию второй оптической гармоники описывается полярным тензором третьего ранга $\hat{\chi}^{(2)}$ [32,38]:

$$I^{2\omega} \propto \left[\hat{\chi}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) \mathbf{E}^\omega \mathbf{E}^\omega \right]^2, \quad (1)$$

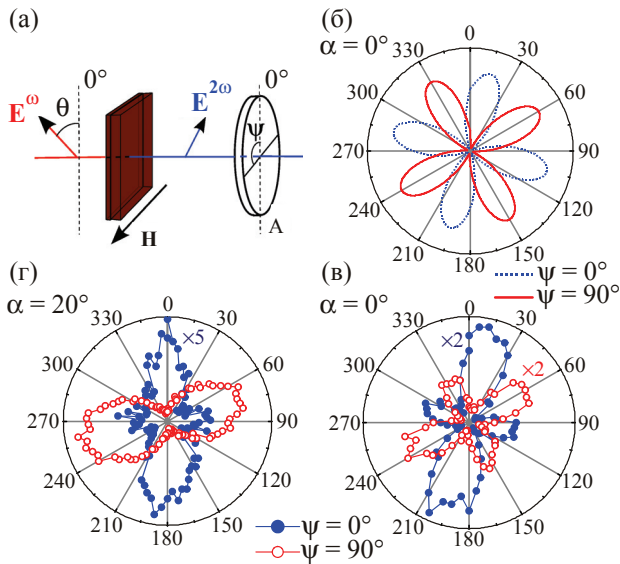


Рис. 5. Экспериментальная геометрия для измерения анизотропии сигнала ГВГ. Угол поворота анализатора (А) составлял $\psi = 0^\circ$ или $\psi = 90^\circ$ с вертикалью. Азимутальный угол θ излучения на фундаментальной длине волны (E^ω) изменялся в пределах 0° – 360° . Магнитное поле H приложено в плоскости пленки (а). Азимутальная зависимость сигнала ГВГ в отсутствие магнитного поля, рассчитанная по формулам (3), (4), для случая нормального падения излучения на пленку граната с ориентацией (111) (б). Измеренные при $T = 50$ К азимутальные зависимости сигнала ГВГ для различных углов падения излучения на фундаментальной длине волны: $\alpha = 0^\circ$ (в), $\alpha = 20^\circ$ (г).

где E^ω — напряженность электрического поля волны на фундаментальной частоте.

Из предыдущих исследований известно, что пленки ферритов-гранатов, выращенные на подложках с ориентацией (111), принадлежат к точечной группе симметрии $3m$, что, в частности, было подтверждено путем изучения генерации второй гармоники [33,34]. Для этой группы целый ряд элементов тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$, описывающего, в частности, генерацию второй гармоники, отличен от нуля. Здесь мы ограничимся только теми компонентами $\hat{\chi}^{(2)}$, которые необходимы для описания генерации второй гармоники в данной экспериментальной геометрии. Для случая нормального падения следующие компоненты тензора нелинейной восприимчивости могут давать вклад в генерацию второй гармоники [39]:

$$xxx = -yux = -xyu = -xyu. \quad (2)$$

С учетом этих элементов общие выражения для интенсивности второй гармоники для двух случаев ориентации анализатора имеют вид

$$I^{2\omega}(\psi = 0^\circ) \propto [I^\omega \chi_{xxx}]^2 [\cos 2(\theta + \gamma) \cos \gamma + \sin 2(\theta + \gamma) \sin \gamma]^2; \quad (3)$$

$$I^{2\omega}(\psi = 90^\circ) \propto [I^\omega \chi_{xxx}]^2 [\cos 2(\theta + \gamma) \sin \gamma + \sin 2(\theta + \gamma) \cos \gamma]^2, \quad (4)$$

где I^ω — интенсивность излучения на фундаментальной длине волны. Угол γ представляет собой угол между осью x пленки и вертикалью лабораторной системы координат. Как следует из выражений (3), (4), именно угол γ определяет положение максимумов азимутальной зависимости интенсивности ГВГ. Анализ экспериментальных зависимостей и сравнение их с расчетом показывают, что в экспериментах угол γ составлял 30° . На рис. 5(б) изображены рассчитанные для $\gamma = 30^\circ$ азимутальные зависимости интенсивности второй гармоники для двух положений анализатора. Как видно, положение максимумов интенсивности сигнала ГВГ находится в хорошем согласии с экспериментальными данными (см. рис. 5(в)). В то же время обращает на себя внимание существенная асимметрия максимумов измеренного сигнала ГВГ, особенно ярко выраженная для положения анализатора $\psi = 0^\circ$, и не согласующаяся с расчетами на основе выражений (3), (4). Мы объясняем это, с одной стороны, существованием дополнительного понижения симметрии пленки, связанного, например, с напряжениями, и, с другой стороны, возможным вкладом в сигнал ГВГ от поверхности пленки и границы раздела пленка–подложка [29–31].

На рис. 5(г) приведены азимутальные зависимости сигнала ГВГ, измеренные при угле падения $\alpha = 20^\circ$. Изменение типа зависимостей связано с тем, что в данной экспериментальной геометрии компоненты тензора $\hat{\chi}$ типа zzz , xxz и yyz также дают вклад в генерацию второй гармоники.

Исследован также процесс генерации второй оптической гармоники в магнитном поле, приложенном в плоскости пленки. В дополнение к кристаллографическому вкладу в ГВГ (1) может существовать и магнитный, который зависит от направления намагниченности [40]:

$$I^{2\omega} \propto [\hat{\chi}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) \mathbf{E}^\omega \mathbf{E}^\omega + \hat{\chi}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0) \mathbf{E}^\omega \mathbf{E}^\omega \mathbf{M}]^2, \quad (5)$$

где $\hat{\chi}^{(3)}$ — аксиальный тензор четвертого ранга, M — намагниченность среды. Этот электродипольный тип нелинейной восприимчивости разрешен в любой нецентросимметричной среде. Как видно из приведенного выражения, интерференция кристаллографического и магнитного вкладов может приводить к различию в интенсивностях сигнала ГВГ для противоположных направлений намагниченности, т.е. магнитному контрасту ГВГ, описываемому формулой

$$MC = \frac{I^{2\omega}(+M) - I^{2\omega}(-M)}{I^{2\omega}(+M) + I^{2\omega}(-M)} =$$

$$= \frac{2\chi_{ijk}^{(2)}\chi_{ijkl}^{(3)}M_l}{(\chi_{ijk}^{(2)})^2 + (\chi_{ijkl}^{(3)}M_l)^2}. \quad (6)$$

На рис. 6(а,б) показаны азимутальные зависимости сигнала ГВГ для двух положений анализатора и для двух противоположных значений поля ± 3 кЭ. Очевидно, что сигнал ГВГ изменяется в зависимости от знака приложенного поля, что соответствует изменению знака отличного от нуля второго слагаемого в выражении (4). На рис. 6(в) показана анизотропия магнитного контраста MC сигнала ГВГ для двух различных положений анализатора. Видно, что для случая, когда излучение второй гармоники поляризовано вдоль магнитного поля (рис. 6(б)), магнитный контраст имеет слабую зависимость от поляризации излучения на фундаментальной длине волны, что находится в хорошем согласии с моделью, в которой кристаллографический и магнитный вклады в ГВГ определяются компонентами нелинейной восприимчивости типа xxx и $xxxy$ соответственно [34,39]. Магнитный контраст ГВГ, как видно на рис. 6(в), составляет величину порядка 20%. Такая величина соответствует ситуации, когда магнитный вклад в нелинейную восприимчивость в 10 раз слабее кристаллографического, $\chi_{xxxy}^{(3)}M / \chi_{xxx}^{(2)} \sim 0,1$. В геометрии $\psi = 0^\circ$ магнитный контраст достигал 60% для некоторых поляризаций входного излучения.

6. Заключение

Проведено магнитооптическое исследование тонкой эпитаксиальной пленки гольмиевого граната $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, выращенной на подложке типа (111) гадолиний-галлиевого граната $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. Следует отметить, что параметры подложки и материала пленки в такой

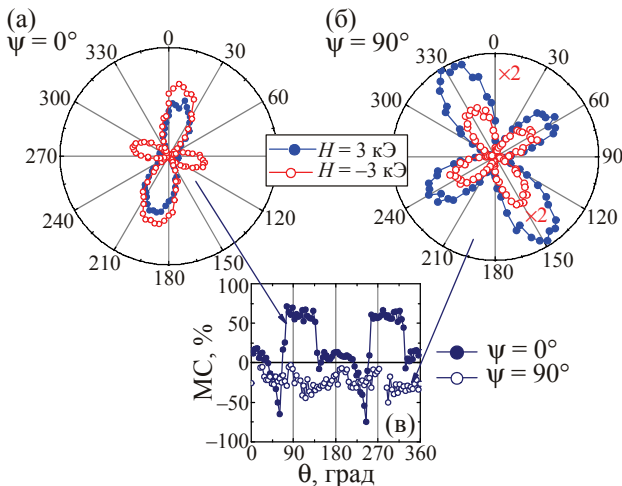


Рис. 6. Азимутальные зависимости сигнала ГВГ при $T = 100$ К для двух различных ориентаций анализатора: $\psi = 0^\circ$ (а) и $\psi = 90^\circ$ (б), измеренные при $T = 100$ К в положительном (заполненные символы) и отрицательном (пустые символы) магнитном поле, приложенном с плоскости пленки. Соответствующие анизотропии магнитного контраста MC (в).

структуре очень близки, в отличие от других пленок редкоземельных ферритов-гранатов. Проанализирована температурная зависимость доменной структуры и характерного размера доменов в области температур от 24 до 312 К. Установлено, что изменения характера доменной структуры свидетельствуют о сосуществовании кубической и одноосной анизотропии. Характерный размер доменов имеет расхожимость в точке компенсации, а также показывает наличие других скачков в изменениях типа доменов. Эти заключения находятся в согласии с исследованиями кривых намагничивания в магнитном поле по нормали к плоскости пленки и в плоскости пленки. Поведение пленки во внешнем магнитном поле свидетельствует о возникновении индуцированных магнитным полем переходов из коллинеарной ферримагнитной в неколлинеарную фазу, причем критические поля и температурный диапазон для этого процесса существенно отличаются от известных для объемного $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$. Исследована генерация второй оптической гармоники под действием лазерных импульсов длительностью 100 фс и центральной энергией фотона 1,55 эВ. Гармоника, как кристаллографическая, так и магнитная, была надежно зарегистрирована несмотря на незначительные различия в параметрах гольмиевого феррита-граната и подложки, что считается неблагоприятным условием для ГВГ.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты 10-02-01008-а, 12-02-00130-а, 12-02-91172-ГФЕН-а) и совместного голландско-российского проекта NWO-РФФИ. В.В.П. благодарит также Фонд им. Александра фон Гумбольдта (Германия) за поддержку.

1. J. Stöhr and H.C. Siegmann, *Magnetism: From Fundamentals to Nanoscale Dynamics*, Springer-Verlag, Berlin (2006).
2. G. Winkler, *Magnetic Garnets*, Braunschweig–Wiesbaden, Vieweg and Sohn (1981).
3. Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшенин, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев, *Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков*, Физматлит, Москва (2001).
4. *Physics of Magnetic Garnets*, A. Paoletti (ed.), North Holland, Amsterdam (1978).
5. А.Е. Clark and E. Callen, *J. Appl. Phys.* **39**, 5972 (1968).
6. А.К. Zvezdin and V.M. Matveev, *Zh. Exp. Teor. Fiz.* **62**, 260 (1972); *Sov. Phys. JETP* **35**, 140 (1972).
7. V.V. Eremenko and N.F. Kharchenko, *Phase Trans.* **1**, 61 (1979); *ibid.* **1**, 207 (1980).
8. А.К. Zvezdin, in: *Handbook of Magnetic Materials*, K.H.J. Buschow (ed.), Elsevier, Amsterdam (1995), vol. 9, p. 405.
9. Н.Ф. Харченко, В.В. Еременко, Л.И. Белый, *ЖЭТФ* **55**, 419 (1968).
10. Н.Ф. Харченко, В.В. Еременко, Л.И. Белый, *ЖЭТФ* **53**, 1505 (1967).
11. О.А. Grzhegorzhevskii and R.V. Pisarev, *Zh. Exp. Teor. Fiz.* **65**, 633 (1973).

12. N.F. Kharchenko, V.V. Eremenko, and S.L. Gnatchenko, *Pis'ma Zh. Exp. Teor. Fiz.* **65**, 633 (1973).
13. N.F. Kharchenko, V.V. Eremenko, S.L. Gnatchenko, L.I. Bely, and E.M. Kabanova, *Zh. Exp. Teor. Fiz.* **68**, 1073 (1975).
14. N.F. Kharchenko, V.V. Eremenko, and S.L. Gnatchenko, *Zh. Exp. Teor. Fiz.* **69**, 1697 (1975).
15. I.G. Avaeva, F.V. Lisovskii, E.G. Mansvetova, and V.I. Shapovalov, *Fiz. Tverd. Tela* **19**, 1577 (1977).
16. M. Bałanda and S. Nizioł, *Phys. Status Solidi B* **91**, 291 (1979).
17. G.V. Arzamastseva, F.V. Lisovskii, and E.S. Chizhik, *Fiz. Tverd. Tela* **35**, 2490 (1977).
18. U.V. Valiev, A.K. Zvezdin, G.S. Krinchik, R.Z. Levitin, K.M. Mukimov, and A.I. Popov, *Zh. Exp. Teor. Fiz.* **79**, 235 (1980).
19. Landolt-Börnstein, *Numerical Data and Functional Relationships*, New Series, Group III, **4b**, Springer-Verlag, Berlin (1993).
20. К.П. Белов, Г.И. Катаев, Р.З. Левитин, С.Л. НИКИТИН, В.И. Соколов, *УФН* **140**, 271 (1983).
21. F. Sayetat, *J. Magn. Magn. Mater.* **58**, 334 (1986).
22. H. Fukumura, N. Tonari, N. Hasuike, H. Harima, K. Kisoda, T. Koide, M. Seki, and H. Tabata, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 064221 (2009).
23. A.K. Zvezdin and V.A. Kotov, *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials*, IoP Publishing, Bristol (1997).
24. A.P. Malozemov and J.C. Slonzewski, *Magnetic Domain Walls in Bubble Materials*, Academic Press, NY (1979).
25. A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic Domains. The Analysis of Magnetic Microstructures*, Springer-Verlag, Berlin (1998).
26. E.V. Berdennikova and R.V. Pisarev, *Fiz. Tverd. Tela* **18**, 81 (1976).
27. M. Tekielak, A. Stupakiewicz, A. Maziewski, and J.M. Desvignes, *J. Magn. Magn. Mater.* **254–255**, 562 (2003).
28. M. Fiebig, V.V. Pavlov, and R.V. Pisarev, *J. Opt. Soc. Amer.* **B22**, 96 (2005).
29. A. Kirilyuk and Th. Rasing, *J. Opt. Soc. Amer.* **B22**, 148 (2005).
30. A. Kirilyuk, *J. Phys. D* **35**, R189 (2002).
31. F. Hansteen, O. Hunderi, T.H. Johansen, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, *Phys. Rev. B* **70**, 094408 (2004).
32. Y.R. Shen, *Nonlinear Optics*, Academy, San Diego (2008).
33. V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, A. Kirilyuk, and T. Rasing, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2004 (1997).
34. V.N. Gridnev, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, *Phys. Rev. B* **63**, 184407 (2001).
35. O.A. Aktsipetrov, V.A. Aleshkevich, A.V. Melnikov, T.V. Misuryaev, T.V. Murzina, and V.V. Randoshkin, *J. Magn. Magn. Mater.* **165**, 421 (1997).
36. R. Pisarev, B. Krichevstov, V. Gridnev, V. Klin, D. Fröhlich, and C. Pahlke-Lerch, *J. Phys.: Condens. Matter* **5**, 8621 (1993).
37. V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, M. Fiebig, and D. Fröhlich, *Fiz. Nizk. Temp.* **28**, 733 (2002) [*Low. Temp. Phys.* **28**, 523 (2002)].
38. R.V. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, London (2003).
39. R.R. Birss, *Symmetry and Magnetism*, Series of Monographs on Selected Topics in Solid State Physics, North-Holland, Amsterdam (1966).
40. P.S. Pershan, *Phys. Rev.* **130**, 919 (1963).

Magneto-optical study of holmium iron garnet Ho₃Fe₅O₁₂

A.M. Kalashnikova, V.V. Pavlov, A.V. Kimel,
A. Kirilyuk, Th. Rasing, and R.V. Pisarev

Bulk holmium iron garnet Ho₃Fe₅O₁₂ is a cubic ferrimagnet with Curie temperature $T_C = 567$ K and magnetization compensation point between 130–140 K. The magneto-optical data are presented for a holmium iron garnet Ho₃Fe₅O₁₂ epitaxial ~10 μm thick film grown on a (111)-type gadolinium-gallium garnet Gd₃Ga₅O₁₂ substrate. A specific feature of this structure is the closeness of the parameters of the bulk material, from which the film has been grown, to the substrate ones. Temperature and field dependences of the Faraday effect and temperature dependence of the domain structure in zero field are investigated. The compensation point of the structure is found to be $T_{comp} = 127$ K. It is shown that the temperature dependence of characteristic size of the domain structure diverges at this point. It is established that the magnetic anisotropy of the material is determined by both uniaxial and cubic contributions, each being characterized by different temperature dependence. A complex form of hysteresis loops and a sharp changes of the domain pattern with varying temperature suggest that there occur collinear–noncollinear phase transitions. Study of the optical second harmonic generation was carried out using 100 fs laser pulses with central photon energy $E = 1,55$ eV. The electric dipole contribution (both crystallographic and magnetic) to the second harmonic generation was observed with high reliability despite a small mismatch of the film and substrate parameters.

PACS: 75.50.Gg Ferrimagnetics;
78.20.-e Optical properties of bulk materials and thin films;
42.65.Ky Frequency conversion; harmonic generation, including higher-order harmonic generation.

Keywords: holmium iron garnet, ferrimagnets, epitaxial films, magneto-optical research.