

05,11

## Диаграммы состояния стратифицированных висмут-празеодимсодержащих пленок ферритов-гранатов во внешнем поле

© Г.В. Арзамасцева, Ф.В. Лисовский, Е.Г. Мансветова

Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Фрязино, Россия

E-mail: list@df.ru

(Поступила в Редакцию 10 ноября 2014 г.

В окончательной редакции 24 июня 2015 г.)

Определен вид диаграмм состояния эпитаксиальных магнитных пленок состава  $Y_{3-x-y}Bi_xPr_yFe_5O_{12}$  на плоскости  $(H_{\parallel}H_{\perp})$ , где  $H_{\parallel}$  и  $H_{\perp}$  — компоненты внешнего магнитного поля, параллельные и ортогональные направлению нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности пленки. Выявлены особенности перемагничивания исследуемых объектов, обусловленные их структурной стратификацией.

### 1. Введение

Эпитаксиальные пленки висмутсодержащих магнитных гранатов, имеющие большое удельное фарадеевское вращение в видимом диапазоне длин волн, наряду с определенной практической ценностью (см., например, [1,2]) представляют заметный интерес и как объекты научного исследования, поскольку в них наблюдаются различные физические эффекты, отсутствующие или слабо выраженные в массивных монокристаллах гранатов аналогичного состава (например, магнитоэлектрический эффект). Значительную роль в возникновении такого различия играет наведенная магнитная анизотропия, тип и характеристики которой зависят не только от состава выращиваемых магнитных пленок, но и от ориентации используемых для эпитаксии немагнитных подложек [3–7].

В общем случае плотность энергии наведенной анизотропии может быть представлена в виде [8]

$$w_a = -K_u(\mathbf{m}\mathbf{n}_u)^2 + K_p(\mathbf{m}\mathbf{n}_p)^2, \quad (1)$$

где  $K_u$  и  $K_p$  — константы одноосной и ромбической анизотропии соответственно,  $\mathbf{m} = \mathbf{M}/|\mathbf{M}|$ ,  $\mathbf{M}$  — вектор намагниченности,  $\mathbf{n}_u$  — орт вдоль оси легчайшего намагничивания,  $\mathbf{n}_p$  — орт вдоль направления легкого (при  $K_p > 0$ ) или трудного (при  $K_p < 0$ ) намагничивания в плоскости, перпендикулярной  $\mathbf{n}_u$ .

Поскольку гранаты представляют собой непрерывные твердые растворы, наведенную магнитную анизотропию можно варьировать в широких пределах, используя метод замещения ионов. Известно, что при замещении в определенной пропорции ионов иттрия в железо-иттриевом гранате ионами висмута и празеодима, вносящими противоположный по знаку вклад в константу одноосной анизотропии  $K_u$ , можно обратить последнюю в нуль [9]. Это может сопровождаться качественным изменением некоторых свойств среды, подобных тем, которые имеют место в точке компенсации магнитного момента для

многоподрешеточных гранатов или в точке Морина для редкоземельных ортоферритов.

Целью настоящей работы является исследование процессов перемагничивания эпитаксиальных висмут-празеодимсодержащих пленок магнитных гранатов с близкой к нулю константой одноосной анизотропии  $K_u$ , а также определение на базе полученных результатов вида диаграмм состояния изучаемых объектов на плоскости  $(H_{\parallel}H_{\perp})$ , где  $H_{\parallel}$  и  $H_{\perp}$  — компоненты внешнего магнитного поля, параллельные и ортогональные направлению нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности пленок.

### 2. Объекты исследования и условия проведения экспериментов

Пленки состава  $Y_{3-x-y}Bi_xPr_yFe_5O_{12}$  ( $x = 0.6–0.8$ ,  $y = 0.5–0.8$ ) выращивались методом жидкофазной эпитаксии на (111)-ориентированных монокристаллических подложках из неодим-галлиевого граната  $Nd_3Ga_5O_{12}$  и кальций-магний-циркониевого граната  $Gd_{3-x}Ca_xGa_{5-x-2y}Mg_yZr_{x+y}O_{12}$ . В качестве растворителя использовалась смесь  $PbO–B_2O_3–Bi_2O_3$ ; температура роста составляла  $\sim 765^\circ\text{C}$ , а температура насыщения  $\sim 1000^\circ\text{C}$ . Скорость роста пленок при данной температуре и угловой скорости вращения штока  $100\text{ rpm}$  составляла около  $1\ \mu\text{m}/\text{min}$ .

Исследование процессов перемагничивания полученных пленок в полях  $H_{\parallel}$  и  $H_{\perp}$  и производилось магнитооптическим (визуально и фотометрически) и волновым методами.

Параллельное нормали к плоскости пленки поле  $H_{\parallel}$  создавалось соленоидом, внутри которого размещались пленка и две катушки, создающие поле  $H_{\perp}$ , параллельное плоскости пленки. Была также предусмотрена возможность поворота пленки вокруг нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности на любой угол  $\varphi_H$  относительно некоторого опорного направления в плоскости.

### 3. Магнитооптические исследования

Визуальное наблюдение за поведением доменной структуры (ДС) по эффекту Фарадея производилось по стандартной схеме с использованием последовательно расположенных источника света, поляризатора, исследуемой пленки, объектива, анализатора и окуляра. Запись петель гистерезиса осуществлялась фотометрическим модуляционным методом с применением обтюлятора, фотоприемника, селективного вольтметра и двухкоординатного самописца.

В исследуемых пленках из-за большой величины индукции насыщения и компенсации константы одноосной анизотропии вектор намагниченности в отсутствие внешних магнитных полей вообще не имеет нормальной к поверхности компоненты, а в слабых полях эта компонента будет мала и не сможет обеспечить достаточную для визуального наблюдения контрастность изображения ДС. Поэтому экспериментальный макет (соленоид с катушками и пленкой внутри) помещался на поворотный столик микроскопа, что обеспечивало возможность изменения угла отклонения нормали  $\mathbf{n}$  от оптической оси системы. В описываемых далее экспериментах этот угол был выбран равным  $\sim 45^\circ$ . Визуальные наблюдения производились для скрещенных поляризатора и анализатора; при определении вида петель гистерезиса угол между плоскостями пропускания поляризатора и анализатора составлял  $45^\circ$ , когда изменение регистрируемой фотоприемником интенсивности света  $I$  можно было приближенно считать линейной функцией проекции вектора намагниченности на направление распространения света.

На рис. 1, *a, b* в координатах  $H_{\perp}-I$  приведены магнитооптические петли гистерезиса, полученные в отсутствие поля  $H_{\parallel}$  с помощью двухкоординатного самописца для значений угла  $\varphi_H = 0$  и  $90^\circ$  соответственно. Видно, что в первом случае пленка перемагничивается исключительно за счет движения доменных границ (ДГ), во втором имеет место также вращение вектора намагниченности в доменах. Для значений угла  $\varphi_H$  в интервале от  $0$  до  $90^\circ$  петли гистерезиса имели промежуточный характер. Малая ширина петель гистерезиса свидетельствует о практически полной компенсации константы одноосной анизотропии  $K_u$ .

На основе анализа приведенной на рис. 2 угловой зависимости поля насыщения  $H_{\perp}^{(cr)}(\varphi_H)$ , при котором заканчивается перемагничивание за счет движения ДГ и (или) вращения намагниченности, можно сделать следующие выводы. Отсутствие шестой гармоники в Фурье-разложении зависимости  $H_{\perp}^{(cr)}(\varphi_H)$  свидетельствует о пренебрежимо малом влиянии кубической (кристаллографической) анизотропии на процессы перемагничивания. В плоскости пленки существуют два выделенных направления: ось легкого намагничивания (ОЛН), которая совпадает с направлением  $\varphi_H = k\pi$ , и ось трудного намагничивания, соответствующая значениям  $\varphi_H = (2k + 1)\pi/2$ , где  $k = 0, 1, 2, \dots$ . Это означает, что

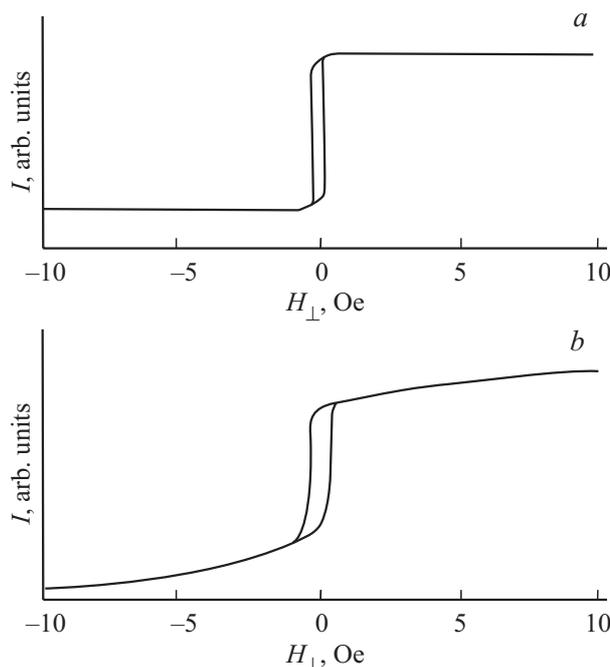


Рис. 1. Магнитооптические петли гистерезиса пленки при  $H_{\parallel} = 0$  для  $\varphi_H = 0$  (*a*) и  $90^\circ$  (*b*).

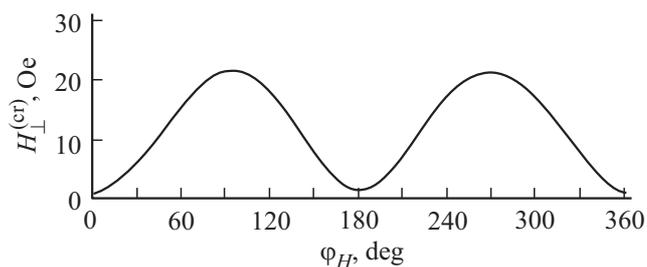


Рис. 2. Зависимость поля насыщения пленки  $H_{\perp}^{(cr)}$  от угла  $\varphi_H$  при  $H_{\parallel} = 0$ .

компенсация одноосной анизотропии методом замещения ионов иттрия ионами висмута и празеоима в определенном количестве и пропорции не влечет за собой компенсацию ромбической компоненты наведенной анизотропии, причем направление орта  $\mathbf{n}_p$  (см. формулу (1)), которое было выбрано в качестве опорного, совпадает с ОЛН в плоскости пленки и соответствует значению  $\varphi_H = 0$  на рис. 2.

Этот результат находит объяснение в рамках теории для двухпараметрической модели наведенной анизотропии, согласно которой для пленок с (111)-ориентацией константы одноосной и ромбической анизотропии могут быть представлены в следующем виде [8,10]:

$$K_u = -B/2, \quad K_p = 2\sqrt{2}(A - B/2)\vartheta_c/3, \quad (2)$$

где  $\vartheta_c$  — угол отклонения оси [111] от нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности пленки,  $A$  и  $B$  — константы в выражении для плотности энергии наведенной анизотропии в двух-

параметрическом представлении

$$w_a = A \sum_{i=1}^3 m_i^2 n_i^2 - \frac{1}{2} B \sum_{i,k=1}^3 m_i m_k n_i n_k, \quad (3)$$

$m_i$  — компоненты вектора  $\mathbf{m} = \mathbf{M}/|\mathbf{M}|$ .

Видно, что константа одноосной анизотропии обращается в нуль при  $B = 0$ , однако константа ромбической анизотропии при этом не исчезает, причем ее величина, равная  $K_p = 2\sqrt{2}\vartheta_c A/3$  определяется углом отклонения оси [111] от нормали.

Для нескольких значений  $\varphi_H$  был определен вид диаграмм состояния пленки на плоскости  $(H_{\parallel}H_{\perp})$ , на которых для упрощения восприятия показаны только линии фазовых переходов (ФП) между различными типами распределения вектора намагниченности в образце. Линии потери устойчивости не приводятся. Начало координат диаграмм является центром инверсии (а не центром симметрии), поскольку эквивалентные ситуации соответствуют замене  $\mathbf{H}$  на  $-\mathbf{H}$ .

Диаграммы получались при фиксированном значении  $H_{\parallel}$  для полного цикла изменения поля  $H_{\perp}$  между двумя моноклиновыми состояниями, т.е. состояниями магнитного насыщения. Простейший вид имеет показанная на рис. 3 диаграмма состояния при  $\varphi_H = 0^\circ$ , когда поле  $H_{\perp}$  ориентировано параллельно опорному направлению вдоль ОЛН, которое здесь и далее изображается штриховой линией (см. вставку на рис. 3). Неоднородные магнитные состояния являются сквозными и существуют внутри узкой клиновидной области диаграммы, причем в слабых нормальных полях ( $H_{\parallel} < 10$  Ое) перемагничивание пленки происходит путем движения сквозной межфазной границы, а с ростом поля (вплоть до максимально достижимых в эксперименте значений  $H_{\parallel} = 400$  Ое) — через сквозные клиновидные домены, размер которых убывает с ростом  $H_{\parallel}$ .

При отклонении поля  $H_{\perp}$  от опорного направления, т.е. от ОЛН в плоскости пленки, диаграмма состояния усложняется, причем максимальное усложнение наблюдается вблизи точек максимума кривой на рис. 2.

Для примера рассмотрим диаграмму состояния для значения  $\varphi_H = 110^\circ$ , показанную на рис. 4. Неоднородные магнитные состояния (сквозные состояния показаны черно-белыми, несквозные — серо-белыми) в данном случае существуют внутри области, ограниченной кривыми  $OQQ' \dots R'RC_2C_1PO$ , вне которой реализуются только однородно намагниченные состояния, где вектор  $\mathbf{M}$  является гладкой функцией  $\mathbf{H}$ . Все линии диаграммы соответствуют линиям ФП первого рода, за исключением отрезка кривой  $C_1C_2$ , на котором происходит ФП второго рода из однородно намагниченного состояния в несквозную ДС, где домены ориентируются почти перпендикулярно направлению поля  $H_{\perp}$ , а не параллельно последнему. Эту „аномалию“ обычно связывают с влиянием магнитострикции [11]. Точки  $C_1$  и  $C_2$  с ординатами 90 и 130 Ое являются трикритическими.

При  $H_{\parallel} < 50$  Ое (область диаграммы ниже точки  $P$ ) перемагничивание происходит через сквозные состояния; в слабых полях ( $H_{\parallel} < 10$  Ое) — путем движения

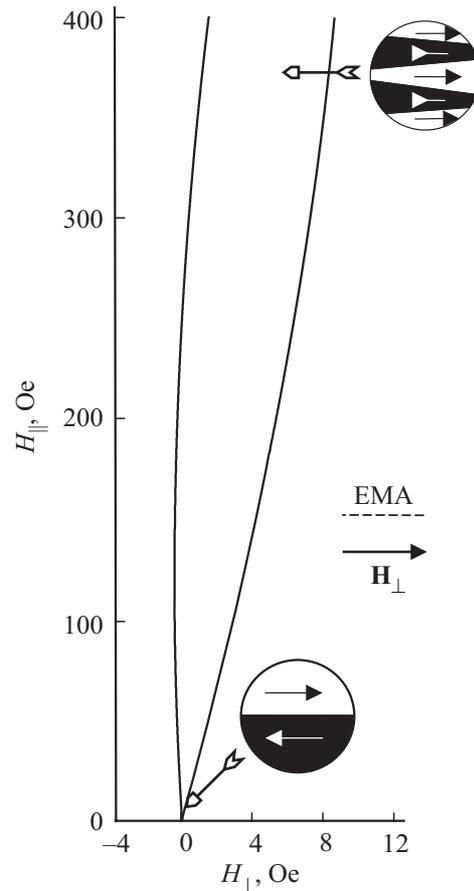


Рис. 3. Диаграмма состояния пленки при  $\varphi_H = 0^\circ$ . ЕМА — ось легкого намагничивания.

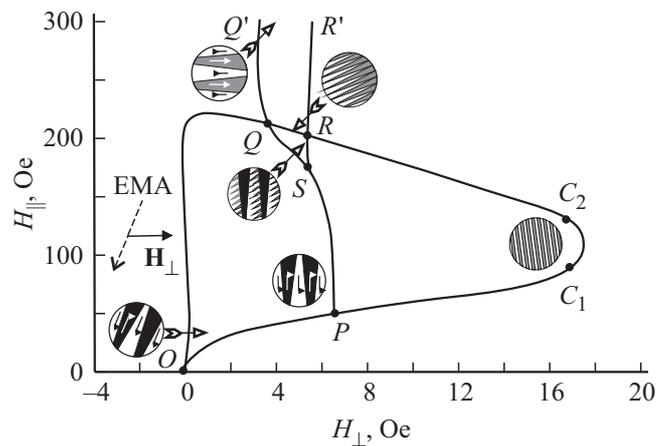


Рис. 4. Диаграмма состояния пленки при  $\varphi_H = 110^\circ$ .

сквозной межфазной границы, а в более сильных (вплоть до  $H_{\parallel} = 50$  Ое) — через сквозные клиновидные домены, область существования которых резко расширялась, а размер уменьшался с ростом  $H_{\parallel}$ . При  $H_{\parallel} > 50$  Ое в процессе перемагничивания возникают несквозные домены.

Область существования сквозных ДС ограничена кривой  $OQSP$  (ординаты точек  $Q$  и  $S$  составляют 210

и 175 Ое соответственно); на линиях  $OQ$  и  $OP$  происходит ФП первого рода в соответствующие однородно намагниченные состояния, на линии  $PS$  — в несквозные ДС, где домены ориентируются почти перпендикулярно направлению поля  $H_{\perp}$ , а на линии  $QS$  — в гибридное состояние, представляющее собой клинообразные сквозные домены, декорированные „елочкой“ из несквозных доменов (см. вставку у линии  $QS$  на рис. 4). В области  $OQSP$  по мере смещения от левой границы к правой происходит также разворот ДГ от одного устойчивого положения к другому, однако этот переход, начинающийся с излома границ, носит нерегулярный характер, и сопоставить ему определенную линию на плоскости  $(H_{\parallel}H_{\perp})$  при визуальном наблюдении ДС не представляется возможным.

Несквозные ДС с почти ортогональной полю  $H_{\perp}$  ориентацией доменов устойчивы внутри области  $SPC_1C_2R$  (ордината точки  $R$  составляет 200 Ое). На линии  $SP$  имеет место ФП первого рода в сквозные ДС, на линии  $PC_1C_2R$  — ФП первого и второго рода в однородно намагниченное состояние, на линии  $SR$  — ФП первого рода в описанное выше гибридное состояние. Гибридное состояние в свою очередь на линии  $QR$  переходит в несквозную ДС с ориентацией доменов вблизи направления поля  $H_{\perp}$ . При увеличении этого поля домены становятся более крупными и стремятся ориентироваться строго параллельно полю  $H_{\perp}$  (см. рис. 4). На линиях  $QQ'$  и  $RR'$  такие домены испытывают неустойчивость по отношению к переходу в однородно намагниченные состояния.

Наличие несквозных доменов в исследуемых пленках показывает, что они являются стратифицированными, т. е. содержат по меньшей мере два слоя, отличающиеся друг от друга по параметрам. Это отличие, по-видимому, является незначительным и обнаруживается только благодаря тому, что константа одноосной анизотропии близка к нулю. Сходная ситуация наблюдалась в обладающих точкой магнитной компенсации  $T_{\text{comp}}$  эпитаксиальных пленках магнитных гранатов различных составов, когда магнитооптическим методом по виду диаграмм послыного перемагничивания вблизи  $T_{\text{comp}}$  удавалось выявлять слои толщиной до  $0.1 \mu\text{m}$  и изменение постоянной решетки от слоя к слою  $\sim 10^{-6} \text{ \AA}$  [12,13].

Можно предположить, что в нашем случае в одном из слоев малая ( $|K_u| \ll 2\pi M^2$ ) одноосная компонента анизотропии является „перекомпенсированной“ ( $K_u < 0$ ), а в другом — „недокомпенсированной“ ( $K_u > 0$ ). Если бы эти слои существовали изолированно, то в отсутствие внешнего магнитного поля первый слой находился бы в монодоменном состоянии, а во втором наблюдалась бы так называемая „страйп-структура“ [14], т. е. полосовая ДС, в которой нормальная компонента вектора  $\mathbf{M}$  является знакопеременной, а параллельная плоскости ДГ компонента — знакопостоянной (см., например, [15]). В пленке эти слои являются магнитоэлектрически и обменно связанными, что и определяет их сложную реакцию на внешнее магнитное поле.

#### 4. Волноводные исследования

Для определения положения областей существования различных типов распределения вектора намагниченности на плоскости  $(H_{\parallel}H_{\perp})$  можно использовать также волноведущие свойства пленок, используя зависимость коэффициента взаимного преобразования мод с ТЕ- и ТМ-поляризацией при распространении от магнитного состояния образцов (см., например, [16]).

В наших экспериментах для возбуждения и разделения оптических мод с ТЕ- и ТМ-поляризацией на длине волны  $\lambda = 1.15 \mu\text{m}$  использовались рутиловые призмы. Входная призма обеспечивала ввод в пленку выбранной моды (например, ТЕ), а выходная — вывод моды с ортогональной поляризацией (например, ТМ). Конструктивная схема создания статических магнитных полей  $H_{\parallel}$  и  $H_{\perp}$ , а также изменения ориентации последнего относительно выделенного направления в плоскости пленки была эквивалентна описанной выше.

Полевые зависимости интенсивности выходной волноводной моды  $I(H_{\perp})$  записывались модуляционным методом с применением обтюлятора, фотоприемника, селективного вольтметра и двухкоординатного самописца. Для обеспечения возможности записи полевых зависимостей производной интенсивности  $\partial I / \partial H_{\parallel}(H_{\perp})$  в схеме были предусмотрены модулирующие катушки, создающие переменное магнитное поле  $h_{\parallel}$  с частотой 1.8 kHz и амплитудой до 1 Ое. В процессе записи указанных зависимостей происходящие изменения ДС можно было наблюдать с помощью поляризационного микроскопа.

На рис. 5 приведены экспериментальные зависимости  $I(H_{\perp})$  при  $H_{\parallel} = 0$  для  $\varphi_H = 0$  (a) и  $110^\circ$  (b, c); стрелками показаны направления изменения поля, кривые b и c смещены относительно друг друга по вертикали, чтобы избежать наложения пиков вблизи нулевого значения поля. Полученные зависимости хорошо коррелируют с магнитооптическими петлями гистерезиса на рис. 1, a, b.

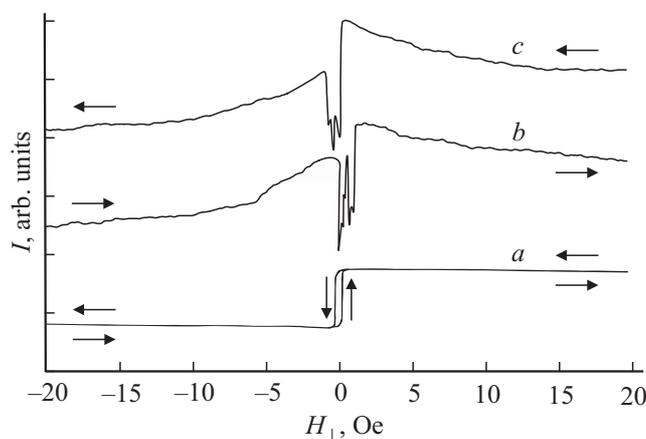
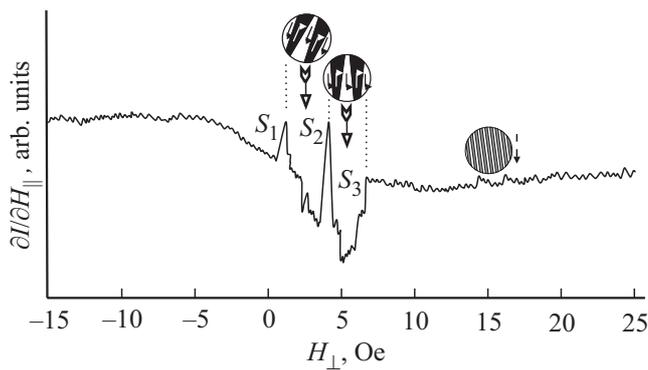


Рис. 5. Полевые зависимости интенсивности выходной волноводной моды  $I(H_{\perp})$  при  $H_{\parallel} = 0$  для  $\varphi_H = 0$  (a) и  $110^\circ$  (b, c).



**Рис. 6.** Дифференциальные полевые зависимости интенсивности выходной волноводной моды  $\partial I/\partial H_{\perp}(H_{\perp})$  при  $H_{\parallel} = 100$  Ое,  $\varphi_H = 110^{\circ}$ .

Более полную информацию о процессах перемагничивания исследуемых пленок при использовании описываемого волноводного метода можно получить, анализируя полевые зависимости производной интенсивности  $\partial I/\partial H_{\perp}(H_{\perp})$ , одна из которых для  $H_{\parallel} = 100$  Ое,  $\varphi_H = 110^{\circ}$  и монотонно возрастающего поля  $H_{\perp}$  приведена на рис. 6. Там же представлено схематическое изображение вида ДС для различных областей изменения поля. Буквами  $S_i$ , где  $i = 1, 2, 3$ , обозначены сингулярные точки кривых, штриховой стрелкой в правой части рисунка отмечено положение точки ФП второго рода из неоднородно намагниченного состояния с несквозными доменами в однородное.

Из сопоставления с диаграммой состояния на рис. 4 следует, что точка  $S_1$  соответствует скачкообразному зарождению клиновидных сквозных доменов, точка  $S_2$  — переориентации границ сквозных доменов от одного устойчивого положения к другому, точка  $S_3$  — переходу сквозных доменов в несквозные домены с почти ортогональной полю  $H_{\perp}$  ориентацией ДГ. Все описанные трансформации принадлежат к ФП первого рода. Заметим, что в точке ФП второго рода из неоднородно намагниченного состояния в однородное на кривой зависимости  $\partial I/\partial H_{\perp}(H_{\perp})$  никаких особенностей не наблюдается.

## 5. Заключение

Анализ результатов исследования процессов перемагничивания пленок состава  $Y_{3-x-y}Bi_xPr_yFe_5O_{12}$  с замещением ионов иттрия ионами висмута и празеодима в пропорции, необходимой для обращения константы наведенной одноосной анизотропии  $K_u$  в нуль, позволяет сделать следующие выводы.

1. Полной компенсации одноосной компоненты анизотропии во всем объеме достигнуть не удастся. Все исследованные пленки выбранного состава являются структурно-стратифицированными, т.е. содержат по меньшей мере два слоя, в одном из которых малая

константа одноосной анизотропии является „перекомпенсированной“ ( $K_u < 0$ ), а в другом — „недокомпенсированной“ ( $K_u > 0$ ).

2. Компенсация одноосной наведенной анизотропии не влечет за собой исчезновение ромбической компоненты, т.е. в слое с  $K_u < 0$  существуют ортогональные друг другу направления легкого и трудного намагничивания.

3. Следствием структурной стратификации является существование в пленках сквозных и несквозных распределений магнитного момента, как однородных, так и неоднородных (доменных структур). Между состояниями с различными распределениями магнитного момента при изменении напряженности и направления внешнего магнитного поля происходят ФП первого и второго рода. По этой причине диаграммы состояния пленок в общем случае имеют чрезвычайно сложный вид.

Попытки обнаружить в исследуемых пленках неоднородный магнитоэлектрический эффект (аналогичный описанному в [5,6]) в электрическом поле, создаваемом зондом атомно-силового микроскопа, успехом не увенчались.

## Список литературы

- [1] А.К. Звездин, В.А. Котов. Магнитооптика тонких пленок. Наука, М. (1988). 192 с.
- [2] В.В. Рандошкин, А.Я. Червоненкис. Прикладная магнитооптика. Энергоатомиздат, М. (1990). 320 с.
- [3] R.V. Pisarev, V.B. Krichevtsov, V.N. Gridnev, V.P. Klin, D. Frolich, Ch. Pahlke-Lerch. J. Phys.: Condens. Matter **5**, 8621 (1993).
- [4] V.N. Gridnev, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev. Phys. Rev. B **63**, 184407 (2001).
- [5] A.S. Logginov, G.A. Meshkov, A.V. Nikolaev, A.P. Pyatakov, V.A. Shust, A.G. Zhdanov, A.K. Zvezdin. J. Magn. Magn. Mater. **310**, 2569 (2007).
- [6] А.С. Логгинов, Г.А. Мешков, А.В. Николаев, А.П. Пятаков. Письма в ЖЭТФ **86**, 124 (2007).
- [7] А.Ф. Кабыченков, Ф.В. Лисовский, Е.Г. Мансветова. Письма в ЖЭТФ **97**, 898 (2013).
- [8] A. Hubert, A.P. Malozemoff, J.C. De Luca. J. Appl. Phys. **45**, 3562 (1974).
- [9] P. Hansen, C.P. Klades, K. Witter. J. Appl. Phys. **60**, 721 (1986).
- [10] А.М. Балбашов, Ф.В. Лисовский, Е.Г. Мансветова, Л.М. Филимонова, Е.С. Чижик. Микроэлектроника **18**, 274 (1989).
- [11] M.H. Yang, M.W. Muller. J. Magn. Magn. Mater. **1**, 251 (1976).
- [12] И.Г. Аваева, В.Б. Кравченко, Ф.В. Лисовский, Е.Г. Мансветова, В.И. Шаповалов. Микроэлектроника **7**, 444 (1978).
- [13] И.Г. Аваева, Ф.В. Лисовский, Е.Г. Мансветова, А.М. Балбашов, А.Я. Червоненкис, М.Л. Шупегин. В сб.: Магнитные элементы автоматики и вычислительной техники / Под ред. М.А. Розенבלата. Наука, М. (1979). С 12.
- [14] R.J. Spain. Appl. Phys. Lett. **3**, 208 (1963).
- [15] J. Kaczer, M. Zeleny, M. Suda. Czech. J. Phys. B **13**, 579 (1963).
- [16] Г.В. Арзамасцева, Ф.В. Лисовский, Е.С. Чижик. ЖТФ **62**, 80 (1992).