

## Генерация оптических гармоник в эпитаксиальных пленках магнитных гранатов в области края фундаментального поглощения

© В.В. Павлов, Р.В. Писарев, М. Fiebig\*, D. Fröhlich\*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\* Institut für Physik, Universität Dortmund,  
44221 Dortmund, Germany

(Поступила в Редакцию 20 июня 2002 г.)

Проведено исследование спектров второй и третьей оптических гармоник в эпитаксиальных пленках магнитных гранатов в спектральных диапазонах 1.7–3.2 и 2.4–4.2 eV соответственно. Обнаружен большой магнитный контраст в спектрах второй оптической гармоники, достигающий величины 100% при определенных энергиях фотонов. В противоположность этому разрешенный по симметрии магнитный вклад в спектрах третьей оптической гармоники не проявлялся. В то время как линейное поглощение в пленках ферритов-гранатов растет на два порядка по величине в спектральной области выше края фундаментального поглощения  $\sim 3.2$  eV, существенного увеличения интенсивности нелинейных спектров в данном спектральном диапазоне не наблюдалось.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и немецкого исследовательского общества Deutsche Forschungsgemeinschaft. Один из авторов (Р.В.П.) благодарит немецкий фонд Alexander von Humboldt Stiftung за финансовую поддержку.

В настоящее время происходит быстрое развитие различных направлений нелинейной оптики, что обусловлено в первую очередь появлением новых источников когерентного излучения и синтезом новых нелинейно-оптических кристаллов. Интерес к исследованиям в области нелинейной оптики твердого тела вызван как фундаментальными проблемами взаимодействия света с веществом, так и возможностями использования нелинейно-оптических явлений для обработки и передачи информации и различных видов диагностики. За прошедшее десятилетие мы стали свидетелями появления новых направлений в этой области. Так, наблюдение генерации второй оптической гармоники (ГВГ), зависящей от состояния намагниченности образца [1,2], вызвало быстрое развитие нелинейной магнитооптики. Было опубликовано большое число работ, посвященных нелинейно-оптическим исследованиям магнитных материалов. Многие результаты отражены в обзорных статьях и сборниках, посвященных нелинейной магнитооптике [3–6]. Анализ этих публикаций показывает, что подавляющее большинство проведенных к настоящему времени исследований посвящено магнитному аспекту проблемы. Во многих работах генерация второй оптической гармоники использовалась для диагностики магнитного состояния вещества. Несомненно, что для выявления микроскопических механизмов нелинейного взаимодействия света с магнитными материалами необходимо проводить исследования нелинейно-оптических явлений в широком спектральном диапазоне. Цель данной работы — изучение спектров генерации второй и третьей оптических гармоник на классических модельных магнитооптических материалах — эпитаксиальных пленках ферритов-гранатов. До недавнего времени в литературе не было сообщений по нелинейной спектро-

скопии оксидов переходных металлов, за исключением единственного исследования генерации третьей оптической гармоники (ГТГ) в  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  [7].

Объемные магнитные гранаты и эпитаксиальные пленки гранатов представляют собой две известные группы материалов, характеризующиеся большим разнообразием магнитных, акустических, оптических и магнитооптических свойств [8–11]. В течение более чем четырех десятилетий они остаются одними из наиболее активно изучаемых магнитных диэлектриков, интересных как с фундаментальной точки зрения в качестве многоподрешеточных ферромагнетиков, так и для прикладных приложений. Прототипом объемных кристаллов и тонких пленок ферритов-гранатов является железо-иттриевый гранат  $\{\text{Y}\}_3[\text{Fe}]_2(\text{Fe})_3\text{O}_{12}$  (YIG). Элементарная ячейка YIG содержит восемь формульных единиц. Ионы иттрия  $\text{Y}^{3+}$  или другие редкоземельные ионы  $\text{R}^{3+}$  находятся в  $24c$  додекаэдрических позициях  $8\{\dots\}_3$ , ионы  $\text{Fe}^{3+}$  находятся в  $16a$  октаэдрических позициях  $8\{\dots\}_2$  и  $24d$  тетраэдрических позициях  $8(\dots)_3$ . Суперобменное взаимодействие между магнитными ионами  $\text{Fe}^{3+}$  приводит к антипараллельному ферромагнитному порядку магнитных моментов октаэдрической и тетраэдрической подрешеток. Это достаточно сильное взаимодействие определяет высокую температуру Кюри, лежащую в диапазоне 500–600 К. Суперобменное взаимодействие между редкоземельными магнитными ионами и железной подрешеткой приводит к антипараллельной ориентации редкоземельных магнитных моментов по отношению к намагниченности тетраэдрической подрешетки. Замечательной особенностью магнитных гранатов является возможность замещения ионов во всех трех магнитных подрешетках многими другими магнитными и немагнитными ионами из периодической таблицы

химических элементов. Эта степень свободы позволяет широко варьировать фактически все физические свойства объемных кристаллов и эпитаксиальных пленок.

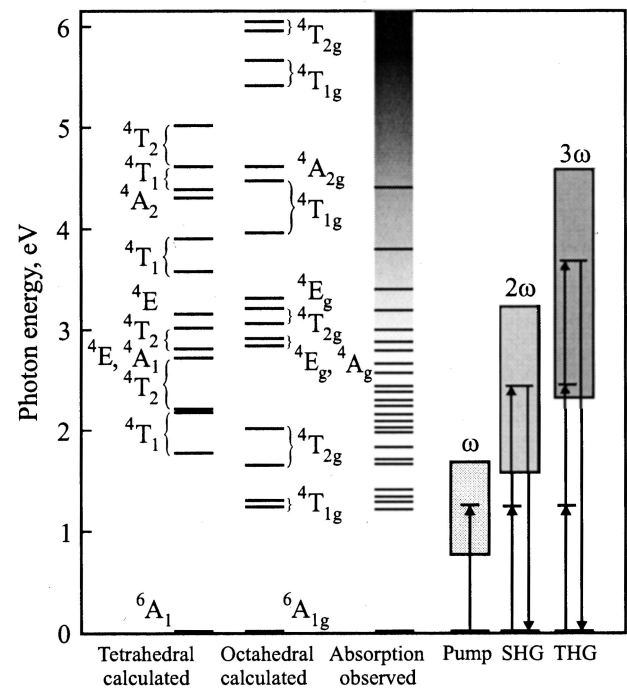
Кристаллы магнитных гранатов обладают высокой прозрачностью в инфракрасном спектральном диапазоне 0.2–1.0 eV [12]. При энергиях меньших 0.2 eV поглощение быстро увеличивается из-за решеточных колебаний. Поглощение заметно увеличивается в области энергий фотонов выше чем  $\sim 1$  eV из-за электронных переходов между  $(3d)^5$ -уровнями ионов железа  $Fe^{3+}$ . Существенное увеличение поглощения при энергиях более 3.2 eV связано с интенсивными межзонными переходами и переходами с переносом заряда. Коэффициент поглощения  $\alpha$  достигает высоких значений  $\sim 5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  при энергиях более 5 eV [13]. Магнитооптические свойства гранатов и особенно висмут-замещенных гранатов вызвали большой интерес вследствие того, что большие величины удельного фарадеевского вращения  $\sim 10^5 \text{ deg/cm}$  наблюдались при комнатных температурах. Насколько нам известно, эти значения являются наибольшими из когда-либо наблюдавшихся при комнатных температурах в магнитоупорядоченных материалах.

Кристаллы магнитных гранатов являются центросимметричными с кубической точечной группой  $m3m$  (пространственная группа  $Ia3d$ ). Однако по наблюдениям линейного магнитоэлектрического эффекта [14] и ГВГ [15–17] доказано, что кристаллическая структура тонких эпитаксиальных пленок гранатов является нецентросимметричной. Это связано с тем, что пленки, выращенные методом жидкофазной эпитаксии на подложках из кубических кристаллов гадолиний-галлиевого граната  $Gd_3Ga_5O_{12}$  (GGG) или сложнозамещенного GGG (SGGG), обладают параметром решетки, отличающимся от такового в подложке, что приводит к некубическим искажениям кристаллической структуры с потерей пространственной инверсии и возникновением полярного направления вдоль нормали к пленке. Предыдущие исследования ГВГ в магнитных пленках гранатов проведены в ограниченном спектральном диапазоне, определенном используемыми лазерами. В нескольких работах использованы твердотельные лазеры на кристаллах  $Nd:Y_3Al_5O_{12}$  (1.17 eV) [15–17] и  $Ti:Al_2O_3$  (1.44–1.72 eV) [18–20]. Хотя нарушение инверсии в кристаллической структуре не играет роли при анализе магнитных свойств, это обстоятельство имеет принципиальное значение при изучении электрооптических и нелинейно-оптических свойств. Нецентросимметричность структуры допускает существование кристаллографического и магнитоиндуцированного вкладов в ГВГ в электродипольном приближении. Очевидно, наблюдение нелинейного отклика на отдельных выделенных энергиях фотонов не может выявить связь между наблюдаемыми сигналами ГВГ и специфическими особенностями электронной структуры спектров поглощения и магнитооптических спектров. В настоящей статье приводятся результаты по спектральному исследованию генерации второй и третьей оптических гармоник в

эпитаксиальных пленках магнитных гранатов в области края фундаментального поглощения  $\sim 3.2$  eV.

## 1. Электронные переходы в ферритах-гранатах

Оптические спектры поглощения и отражения в ферритах-гранатах с различным составом были предметом изучения в большом числе публикаций, и наиболее важные данные приведены в [11]. Несмотря на многочисленные исследования в этом направлении, спектральные особенности в большинстве случаев остаются неразрешенными из-за сложности спектров и неоднозначной интерпретации электронных переходов для магнитных ионов, находящихся в различных кристаллографических позициях. На рис. 1 приведена энергетическая диаграмма для электронных переходов в железо-иттриевом гранате, полученная на основе экспериментальных данных и расчетов электронных уровней в приближении кристаллического поля. В средней части рис. 1 показаны экспериментально наблюдаемые электронные переходы в YIG по работам различных авторов [12,13,21–27]. Электронная структура ферритов-гранатов была предметом теоретических исследований, основанных на теории кристаллического поля и теории



**Рис. 1.** Энергетические состояния ионов железа  $Fe^{3+}$  в тетраэдрическом и октаэдрическом кристаллических полях с учетом некубических искажений (левая часть). В средней части показаны экспериментально наблюдаемые локализованные электронные переходы и непрерывный спектр выше края фундаментального поглощения в YIG [12,13,21–27]. Правая часть рисунка показывает энергетический диапазон оптической накачки и генерации гармоник.

молекулярных орбиталей [12,21,26,28–30]. В левой части рис. 1 показаны электронные состояния иона железа  $Fe^{3+}$  в тетраэдрических и октаэдрических подрешетках. Эти состояния рассчитаны с использованием теории кристаллического поля с учетом тетрагональных искажений в тетраэдрической подрешетке и тригональных искажений в октаэдрической подрешетке [30]. Расчеты показывают, что соответствующие расщепления и изменения электронных состояний могут быть порядка 0.5 eV и поэтому сопоставимы с расщеплением электронных состояний в кубических кристаллических полях с симметрией  $T_d(\bar{4}32)$  и  $O_h(m3m)$ . Ниже фундаментального края поглощения электронные переходы можно изучать методами, основанными на измерении оптических и магнитооптических спектров пропускания, а для электронных переходов выше края поглощения  $\sim 3.2$  eV более эффективными являются отражательные методы [21,23,24]. Тем не менее при исследовании очень тонких пленок YIG ( $t = 0.26 \mu m$ ) спектры поглощения были получены до 5.0 eV [13]. Необходимо отметить, что все оптические переходы между локализованными электронными состояниями иона  $Fe^{3+}$  являются запрещенными по спину. Кроме того, переходы в октаэдрической подрешетке запрещены по четности в электродипольном приближении и становятся разрешенными при учете электрон-фононного взаимодействия. Оптическое поглощение YIG в инфракрасном спектральном диапазоне начинается в области  $\sim 1.2$  eV и вызвано локализованным электронным переходом  ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4T_{1g}$  между  $(3d)^5$  уровнями ионов  $Fe^{3+}$  в октаэдрической подрешетке. Этот переход является магнитодипольным и приводит к появлению двух очень слабых линий в спектре поглощения [22]. Как видно из рис. 1, при более высоких энергиях электронные переходы в тетраэдрических и октаэдрических подрешетках накладываются, и однозначная интерпретация электронных состояний становится затруднительной. Фактически экспериментально наблюдаемый спектр YIG характеризуется более сложной структурой, чем ожидается из теории, учитывающей тетрагональные и тригональные искажения. Дело в том, что положение электронных уровней зависит не только от параметров кубического и некубического кристаллических полей, но и от других внутриаомных параметров: величины спин-орбитальной связи, константы обменного взаимодействия и т.д. В сильно коррелированных системах, таких как соединения ферритов-гранатов, парные переходы могут приводить к дополнительным полосам поглощения в оптических спектрах. Например, полосы поглощения в спектральном диапазоне около 2.5 eV связаны, по крайней мере отчасти, с парными переходами. Эти факторы, являясь сопоставимыми по величине и не точно известными, затрудняют однозначную идентификацию оптических полос поглощения. Оптические и магнитооптические исследования при низких температурах могут лишь частично решить проблемы, связанные с идентификацией оптических переходов и

расщеплений электронных уровней в сложных структурах энергетических спектров.

Точное значение энергии края фундаментального поглощения не является хорошо определенным и обычно принимается в области около 3.2–3.4 eV, где оптический коэффициент поглощения в YIG начинает существенно увеличиваться, приближаясь к значениям  $\sim 5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  при энергиях более 5 eV [13]. Такое значение поглощения типично для межзонных переходов в оксидах переходных металлов. Замена ионов иттрия  $Y^{3+}$  ионами  $Bi^{3+}$  в ферритах-гранатах приводит к смещению края поглощения в область более низких энергий и к существенному увеличению магнитооптических эффектов в видимом и ультрафиолетовом спектральных диапазонах. Предложенные микроскопические механизмы усиления магнитооптических эффектов Фарадея и Керра связаны с увеличением спин-орбитальной взаимодействия из-за формирования молекулярной орбиты между  $3d$ -орбиталями ионов железа  $Fe^{3+}$  и  $2p$ -орбиталями ионов кислорода  $O^{2-}$ . Далее происходит смешивание с  $6p$ -орбиталями ионов висмута  $Bi^{3+}$ , которые имеют большой коэффициент спин-орбитального взаимодействия. Проведенный в работе [31] анализ показывает, что наиболее важные электронные переходы, ответственные за фарадеевское вращение в висмут-замещенных гранатах, находятся в области энергий 2.6, 3.15, и 3.9 eV.

## 2. Образцы и экспериментальная установка

В настоящей работе использовались тонкие пленки магнитных гранатов, выращенные методом жидкофазной эпитаксии на прозрачных немагнитных подложках объемных кристаллов GGG или SGGG. Пленки, выращенные на подложках с четырьмя различными типами ориентации (001), (110), (111) и (210), отличались по толщине, химическому составу и параметрам подложки [20].

Экспериментальная установка для измерения ГВГ и ГТГ показана на рис. 2. В установке использовался импульсный твердотельный лазер Nd:YAG с энергией

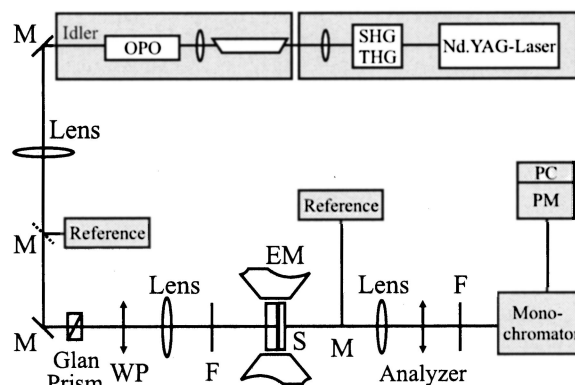


Рис. 2. Схема экспериментальной установки.

фотона 1.17 eV, частотой повторения импульсов 10 Hz. Свет этого лазера с помощью нелинейного кристалла KDP преобразовывался во вторую, а затем в третью оптическую гармонику и использовался для накачки оптического параметрического генератора (ОРО) на основе кристалла  $\beta$ -BaВ<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. ОРО служил источником света. Интенсивность и длина волны света контролировались с помощью измерителя мощности и монохроматора соответственно. Для нормировки наблюдаемых сигналов ГВГ и ГТГ измерялась энергия импульсов прошедшего через образец света на основной частоте. Это необходимо было сделать, поскольку образцы пленок ферритов-гранатов имели различный состав и толщины, что оказывало влияние на интенсивность света на основной частоте и соответственно на измеряемые сигналы ГВГ и ГТГ. Полуволновая пластинка и поляризатор применялись для установления определенной поляризации света на основной частоте. Оптический фильтр, установленный перед образцом, использовался для подавления возможных паразитных сигналов ГВГ и ГТГ. Оптический фильтр, установленный после образца, был необходим для подавления света на основной частоте. Анализатор выделял требуемую поляризацию света на частотах ГВГ и ГТГ. Для исключения возможных сигналов, связанных с двухфотонной люминесценцией, в отдельных экспериментах применялся монохроматор. С помощью телеобъектива свет на удвоенной или утроенной частоте фокусировался на охлаждаемую ССД камеру или фотоумножитель. При обработке данных учитывалась спектральная зависимость фильтров и систем регистрации света.

### 3. Нелинейно-оптические восприимчивости в магнитоупорядоченных кристаллах

В электродипольном приближении в магнитных кристаллах связь между электрическим полем световой волны  $\mathbf{E}$  на основной частоте и индуцированной нелинейной поляризацией  $\mathbf{P}$  на удвоенной и утроенной частотах можно записать с помощью следующих соотношений:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(2\omega) &= \varepsilon_0 \hat{\chi}_{cr}^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \\ &+ \hat{\chi}_m^{(3)}(-2\omega; \omega, \omega, 0) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{M}(0), \\ \mathbf{P}(3\omega) &= \varepsilon_0 \hat{\chi}_{cr}^{(3)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \\ &+ \hat{\chi}_m^{(4)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega, 0) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{M}(0), \end{aligned} \quad (1)$$

где  $\mathbf{M}$  — спонтанная намагниченность. Полярный  $\hat{\chi}_{cr}^{(2)}$  и аксиальный  $\hat{\chi}_m^{(3)}$  нелинейно-оптические тензоры разрешены в средах без центра инверсии и описывают кристаллографический и магнитный вклады в ГВГ соответственно. Эти два вклада в принципе можно разделить на

основе измерений вращательной анизотропии ГВГ [18]. Полярный  $\hat{\chi}_{cr}^{(3)}$  и аксиальный  $\hat{\chi}_m^{(4)}$  тензоры разрешены во всех средах и описывают кристаллографический и магнитный вклады в ГТГ соответственно. В области прозрачности магнитных кристаллов компоненты тензоров  $\hat{\chi}_{cr}^{(2)}$  и  $\hat{\chi}_{cr}^{(3)}$  являются вещественными величинами, а компоненты тензоров  $\hat{\chi}_m^{(3)}$  и  $\hat{\chi}_m^{(4)}$  — чисто мнимыми. Интенсивность сигналов ГВГ и ГТГ можно рассчитать, используя следующие соотношения:

$$\begin{aligned} I(2\omega) &\propto E_0^4 |\chi_{cr}^{(2)} \pm \chi_m^{(3)} M|^2 \\ &= E_0^4 \left( |\chi_{cr}^{(2)}|^2 + |\chi_m^{(3)}|^2 M^2 \pm 2 |\chi_{cr}^{(2)}| |\chi_m^{(3)}| M \cos(\varphi_1) \right), \\ I(3\omega) &\propto E_0^6 |\chi_{cr}^{(3)} \pm \chi_m^{(4)} M|^2 \\ &= E_0^6 \left( |\chi_{cr}^{(3)}|^2 + |\chi_m^{(4)}|^2 M^2 \pm 2 |\chi_{cr}^{(3)}| |\chi_m^{(4)}| M \cos(\varphi_2) \right), \end{aligned} \quad (2)$$

где  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  представляют разность фаз между оптическими волнами, вызванными кристаллографическим и магнитным вкладами в ГВГ и ГТГ соответственно. Появление в выражениях для интенсивностей ГВГ и ГТГ членов, пропорциональных намагниченности  $M$ , обусловлено интерференцией этих волн в спектральной области, где оптическое поглощение отлично от нуля, а оптические фазы  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  могут быть отличными от  $90^\circ$ . Знаки  $+/-$  относятся к противоположным проекциям намагниченности  $\mathbf{M}$ . Симметричные свойства тензоров  $\hat{\chi}_{cr}^{(2)}$ ,  $\hat{\chi}_m^{(3)}$ ,  $\hat{\chi}_{cr}^{(3)}$  и  $\hat{\chi}_m^{(4)}$  строго определяются кристаллографической точечной группой. Отличные от нуля компоненты тензоров  $\hat{\chi}_{cr}^{(2)}$  и  $\hat{\chi}_m^{(3)}$  приведены в [20], а в таблице приведены ненулевые компоненты тензоров  $\hat{\chi}_{cr}^{(3)}$  и  $\hat{\chi}_m^{(4)}$  для точечной группы  $3m$ . Магнитный контраст ГВГ и ГТГ определяется как нормированная разность между сигналами интенсивности гармоник для противоположных ориентаций намагниченности насыщения

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ГВГ}} &= \frac{I(2\omega, +M) - I(2\omega, -M)}{I(2\omega, +M) + I(2\omega, -M)}, \\ \rho_{\text{ГТГ}} &= \frac{I(3\omega, +M) - I(3\omega, -M)}{I(3\omega, +M) + I(3\omega, -M)}. \end{aligned} \quad (3)$$

### 4. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Оптические спектры поглощения пленок ферритов-гранатов измерялись с помощью спектрофотометра Cary-2300 и были в согласии с литературными данными. Спектры поглощения, измеренные при  $T = 15$  К в трех различных пленках, показаны на рис. 3, с, 4, с и 5, с. Оптическая плотность выше чем  $D = 4.5$  была вне рабочего диапазона спектрофотометра и не могла быть измерена.

Ненулевые компоненты нелинейно-оптических тензоров  $\hat{\chi}_{cr}^{(3)}$  и  $\hat{\chi}_{cr}^{(4)}$ , определяющих генерацию кристаллографической и магнитной третьей гармоники для точечной группы  $3m$  ( $m \perp x$ ) в геометрии  $\mathbf{k} \parallel \mathbf{z}$  (пленки типа (111)).

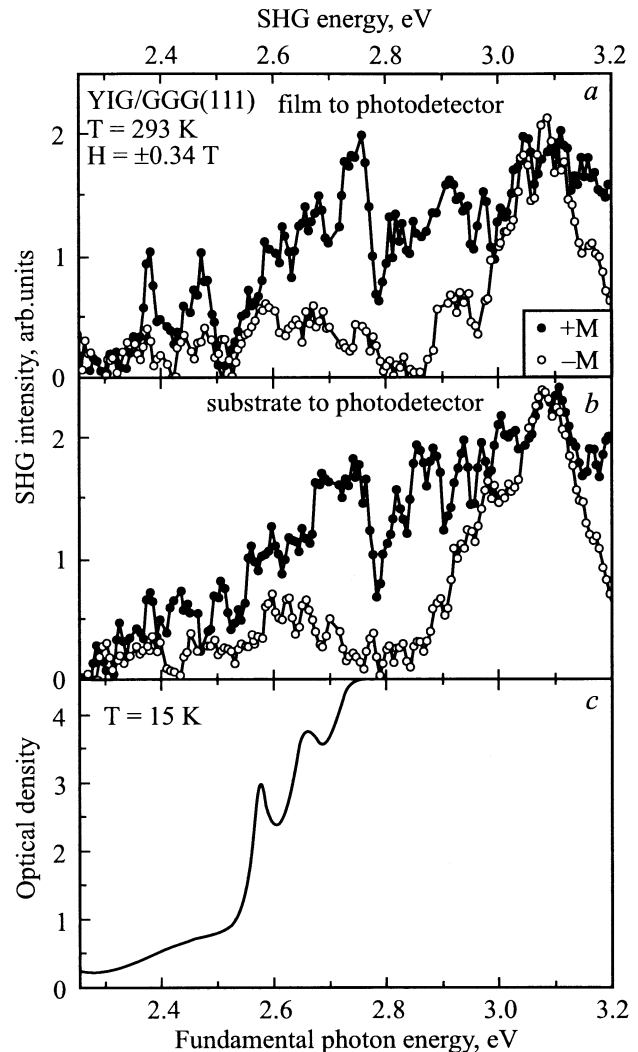
Кристаллографическая третья гармоника, $\chi_{ijkl}^{(3)}$
$1/3\text{уууу} = 1/3\text{хххх} = \text{ххуу} = \text{ухху}$
Магнитная третья гармоника, $\chi_{ijklm}^{(4)}$
$\text{уууух}, \text{ухууу}, \text{уххух}$
$\text{ххххх} = -1/2\text{ууууу} - \text{ухууу} - 1/2\text{уххуу}$
$\text{хххуу} = 1/2\text{ууууу} - 1/2\text{уххуу}$
$\text{ххууу} = -1/2\text{ууууу} + \text{ухууу} - 1/2\text{уххуу}$
$\text{хуууу} = 1/2\text{ууууу} + \text{уххуу}$
$\text{уххху} = \text{ууууу} - \text{ухууу} + \text{уххуу}$
$\text{ухууу} = -\text{хххху} = -1/3\text{хуууу} = 1/3\text{уххху}$

На рис. 3, *a* и *b* показаны спектры ГВГ в пленке YIG/GGG(111) для двух противоположных ориентаций намагниченности  $\mathbf{M}$  в поперечной геометрии, т.е. при распространении лучей света на основной и удвоенной частотах в направлении, перпендикулярном вектору намагниченности  $\mathbf{M}$ . Приведены зависимости для двух случаев: *a* — сигнал ГВГ, полученный непосредственно от свободной поверхности пленки (случай film-to-photodetector) и *b* — сигнал ГВГ, полученный от интерфейса пленка-подложка (случай substrate-to-photodetector). Эти две конфигурации эксперимента приводят к различным спектрам ГВГ. В частности, расщепление в области 2.4 eV заметно для свободной поверхности пленки и является замытым для более напряженной поверхности пленки, связанной с подложкой. Следует обратить внимание, что магнитный контраст  $\rho^{\text{ГВГ}}$  изменяется от 0 до 100%. Это свидетельствует о сравнимости величин кристаллографического и магнитного вкладов в ГВГ. Согласно диаграмме электронных уровней энергии, показанной на рис. 1, некоторые особенности в спектре ГВГ можно связать с электронными переходами ионов железа  $\text{Fe}^{3+}$ , находящихся в тетраэдрическом и октаэдрическом кристаллических полях. Две особенности в спектре ГВГ в области 2.57 и 2.66 eV, по-видимому, можно связать с электронными переходами  ${}^6A_1 \rightarrow {}^4E$ ,  ${}^4A_1$  в тетраэдрической подрешетке и  ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4E_g$ ,  ${}^4A_g$  в октаэдрической подрешетке соответственно. Два пика в спектре поглощения, наблюдавшиеся, по литературным данным, в области 2.9 и 3.2 eV, обладают силой осциллятора на порядок величины выше, чем для переходов в области 2.6 eV. Однако спектральные особенности в спектре ГВГ в этой области имеют тот же порядок величины, как и для переходов с более низким оптическим поглощением.

Как показано в работе [20], висмут-замещенные пленки гранатов дают наиболее сильные сигналы ГВГ. На рис. 4, *a* и *b* показаны спектры ГВГ для висмут-замещенной пленки феррита-граната Bi-YIG/GGG(111). Замещение иттрия висмутом приводит к существенному

усилению сигналов ГВГ в области энергий 2.0–2.4 eV. Спектры ГВГ для висмут-замещенной пленки феррита-граната Bi-YIG/SGGG(210) показаны на рис. 5, *a* и *b*. Спектр ГВГ измерен в диапазоне энергий 1.7–3.1 eV при температуре  $T = 6$  К. В спектре хорошо видны пять зон с большой величиной сигналов ГВГ и сильным магнитным контрастом. Необходимо обратить внимание, что спектры для двух сторон пленки имеют различия, как это имело место для пленок YIG/GGG(111) и Bi-YIG/GGG(111). Как и в случае пленок типа (111), существенное увеличение линейного оптического сигнала в области края фундаментального поглощения не приводит к значимому увеличению интенсивности ГВГ.

На рис. 6, *a* и *b* показаны характерные вращательные анизотропии сигналов ГВГ для пленок Bi-YIG/GGG(111) и Bi-YIG/SGGG(210). В этих экспериментах интенсивно-



**Рис. 3.** Спектры ГВГ в пленке YIG/GGG(111) для двух противоположных ориентаций намагниченности  $\mathbf{M}$  в поперечной геометрии: *a* — сигнал ГВГ от свободной поверхности пленки (film-to-photodetector), *b* — сигнал ГВГ от интерфейса пленка-подложка (substrate-to-photodetector), *c* — спектр линейного поглощения в пленке YIG/GGG(111).

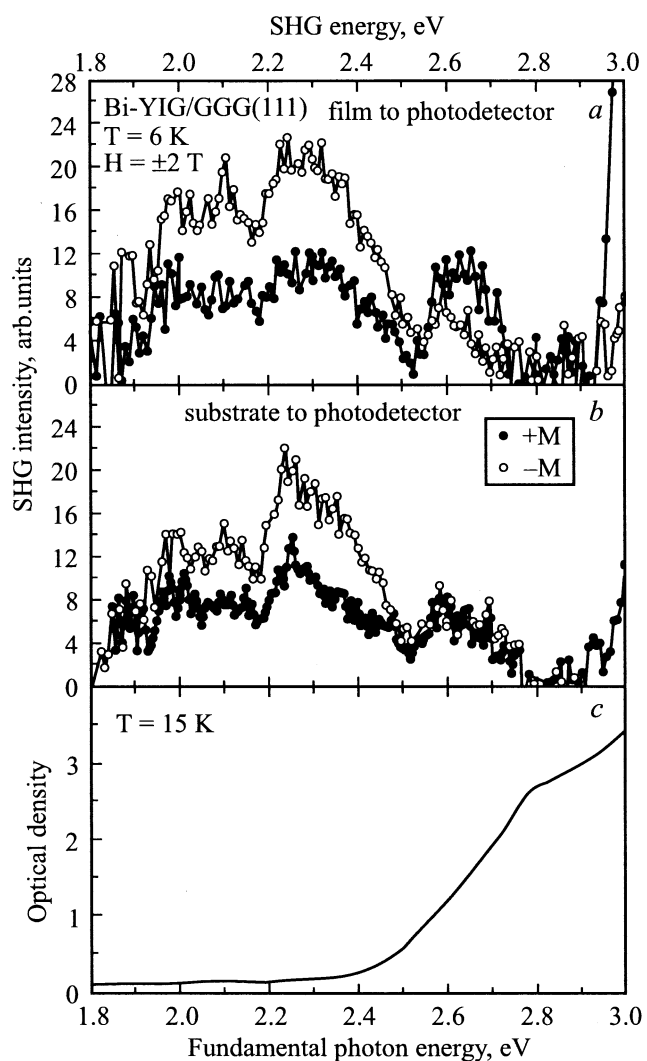


Рис. 4. То же, что на рис. 3, для пленки Bi-YIG/GGG(111).

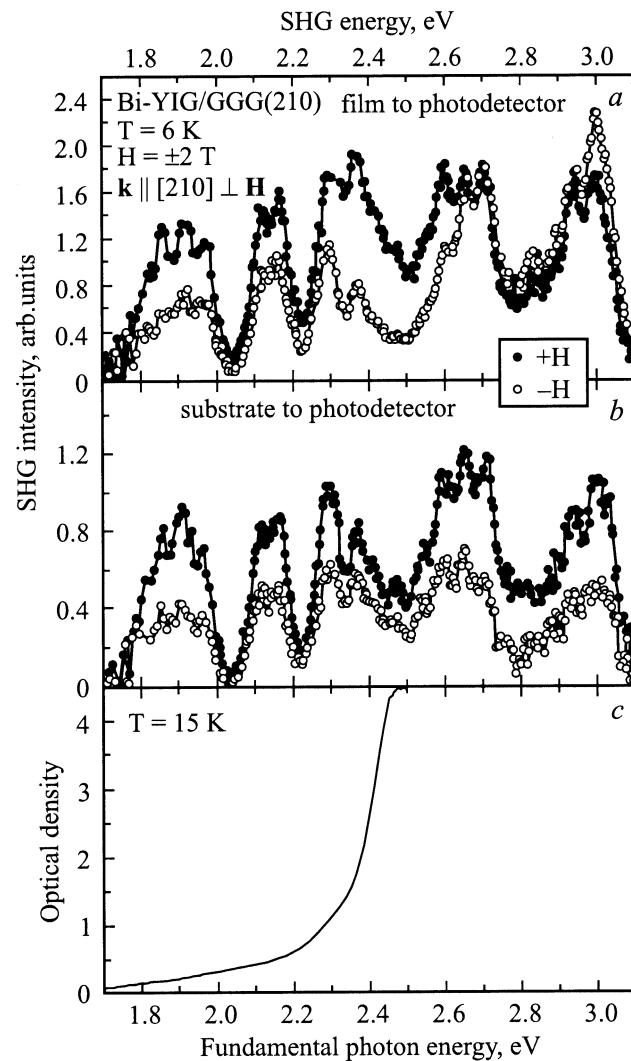


Рис. 5. То же, что на рис. 3, для пленки Bi-YIG/GGG(210).

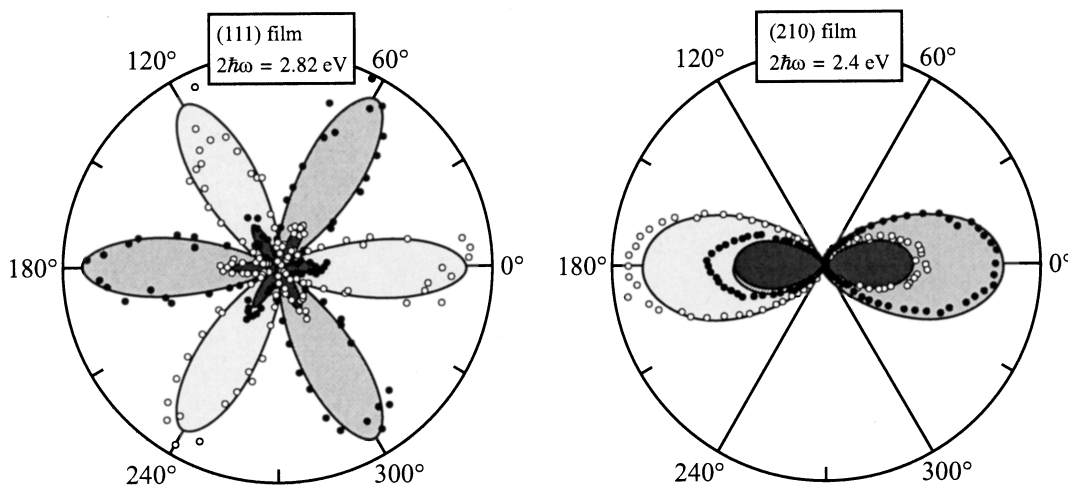
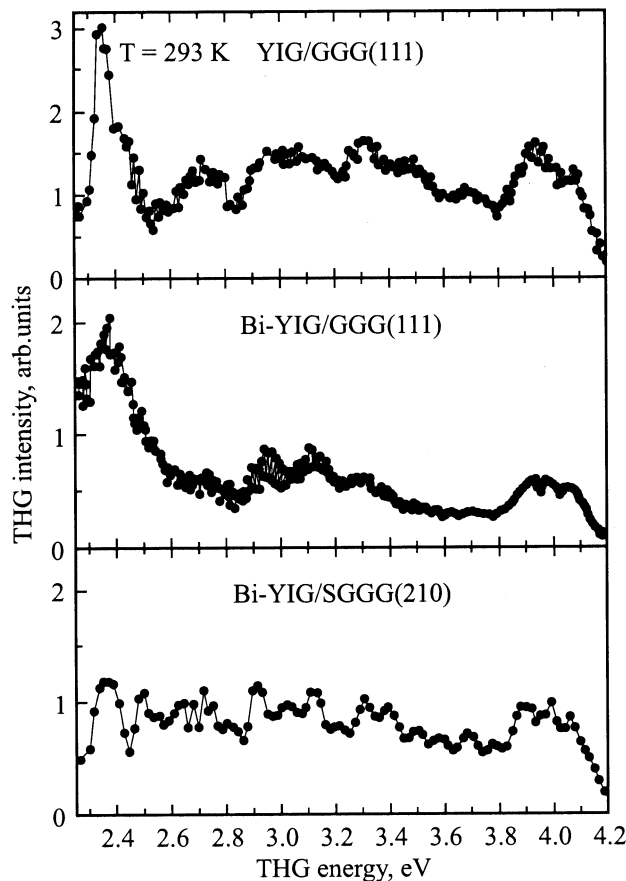


Рис. 6. Вращательные анизотропии сигналов ГВГ для пленок Bi-YIG/GGG(111) и Bi-YIG/GGG(210).



**Рис. 7.** Спектры ГТГ в пленках YIG/GGG(111), Bi-YIG/GGG(111) и Bi-YIG/SGGG(210).

сти сигналов ГВГ измерялись как функция угла поворота одновременно входной и выходной поляризации света в диапазоне углов  $0-360^\circ$  для двух противоположных ориентаций намагниченности  $\mathbf{M}$  в поперечной геометрии. Измеренные зависимости отражают симметрию пленок ферритов-гранатов, выращенных на подложках типа (111) и (210). Теоретический анализ и экспериментальные данные по анизотропии сигналов ГВГ в пленках с различной кристаллографической ориентацией приведены в работе [20].

На рис. 7, *a-c* показаны спектры сигналов ГТГ в трех гранатовых пленках YIG/GGG(111), Bi-YIG/GGG(111) и Bi-YIG/SGGG(210) соответственно. Необходимо отметить, что в электродипольном приближении для наблюдения сигналов ГТГ не требуется нарушения симметрии пространственной инверсии. Хотя величины оптического поглощения и магнитооптических сигналов существенно отличаются в исследованных пленках, их спектры ГТГ являются подобными. Электронный переход  ${}^6A_1 \rightarrow {}^4T_2$  в области 2.4 eV в тетраэдрической подрешетке хорошо разрешен в спектре ГТГ, и в особенности в малонапряженной пленке YIG/GGG(111). Необходимо отметить, что сильное увеличение линейного поглощения в области энергий более 3 eV не сопровождается соответствующим

увеличением сигналов ГТГ. В отличие от сигналов ГВГ магнитный контраст в спектрах сигналов ГТГ не наблюдался в пределах экспериментальной погрешности измерений. Это вызывает удивление, поскольку согласно феноменологии магнитный вклад в ГТГ разрешен как в продольной, так и поперечной геометрии.

Таким образом, проведено исследование спектров генерации второй оптической гармоники в анизотропных магнитных пленках ферритов-гранатов на подложках с различной кристаллографической ориентацией в диапазоне энергий фотонов от 1.7 до 3.2 eV. Выявлены кристаллографический и магнитный вклады в общую интенсивность сигналов ГВГ. Измерены спектры генерации третьей оптической гармоники в диапазоне энергий фотонов 2.4–4.2 eV ниже и выше края фундаментального поглощения  $\sim 3.2$  eV. В то время как линейное поглощение возрастает при энергии фотонов более 3 eV, сигналы ГВГ и ГТГ не показывают какого-либо существенного изменения интенсивности. Эти экспериментальные данные позволяют высказать предположение, что локальные  $d-d$  переходы вносят основной вклад в нелинейно-оптические спектры. Вклады, связанные с электронными переходами с переносом заряда и межзонными переходами, являются менее существенными и вносят незначительный вклад в нелинейные оптические восприимчивости. Очень интересный и необычный результат — наблюдение большого магнитного вклада в спектрах ГВГ с магнитным контрастом до 100%. В противоположность этому магнитный вклад в спектрах ГТГ обнаружен не был. Приведенные данные по генерации оптических гармоник в эпитаксиальных пленках ферритов-гранатов показывают новые возможности нелинейно-оптических методик и стимулируют дальнейшие экспериментальные и теоретические исследования оптических явлений высших порядков в магнитоупорядоченных материалах.

Авторы благодарят Н.-J. Weber за помощь в измерениях оптических спектров поглощения.

## Список литературы

- [1] J. Reif, J.C. Zink, C.-M. Schneider, J. Kirschner. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2878 (1991).
- [2] J. Reif, C. Rau, E. Matthias. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1931 (1993).
- [3] Th. Rasing. *J. Magn. Magn. Mater.* **175**, 35 (1997).
- [4] *Nonlinear Optics in Metals* / Ed. by K.H. Bennemann. Clarendon Press, Oxford (1998).
- [5] Special issue on Nonlinear Optics at Interfaces. *Appl. Phys. B* **68** (1999).
- [6] E. Hanamura, M. Fiebig, Y. Tanabe. In: *Magneto-Optics* / Ed. by S. Sugano, N. Kojima. Springer, Berlin (2000).
- [7] A. Schülzgen, Y. Kawabe, E. Hanamura, A. Yamanaka, P.-A. Blanche, J. Lee, H. Sato, M. Naito, N.T. Dan, S. Uchida, Y. Tanabe, N. Peyghambarian. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3164 (2001).
- [8] *Physics of Magnetic Garnets* / Ed. by A. Paoletti. North Holland, Amsterdam (1978).
- [9] G. Winkler. *Magnetic garnets*. Vieweg, Braunschweig (1981).

- [10] Magnetic garnet films / Guest editor A. Paoletti. Special issue of Thin Solid Films **114** (1984).
- [11] Landolt-Börnstein. Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology. New Series, Group III, 27/e. Springer-Verlag, Berlin (1991).
- [12] D.L. Wood, J.P. Remeika. J. Appl. Phys. **38**, 1038 (1967)
- [13] G.B. Scott, J.L. Page. Phys. Stat. Sol. (b) **79**, 203 (1977).
- [14] Б.Б. Кричевцов, В.В. Павлов, Р.В. Писарев. Письма в ЖЭТФ **49**, 466 (1989); ФТТ **37**, 77 (1989).
- [15] О.А. Акипетров, О.В. Брагинский, Д.А. Есиков. Квантовая электроника **17**, 320 (1990).
- [16] G. Pertocelli, S. Martelucci, M. Richetta. Appl. Phys. Lett. **63**, 3402 (1993).
- [17] R.V. Pisarev, B.B. Krichevstov, V.N. Gridnev, V.P. Klin, D. Fröhlich, Ch. Pahlke-Lerch. J. Phys. **C5**, 8621 (1993).
- [18] V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, A. Kirilyuk, Th. Rasing. Phys. Rev. Lett. **78**, 2004 (1997).
- [19] V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, A. Kirilyuk, Th. Rasing. J. Appl. Phys. **81**, 4631 (1997).
- [20] V.N. Gridnev, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, A. Kirilyuk, Th. Rasing. Phys. Rev. B **63**, 184407 (2001).
- [21] F.J. Kahn, P.S. Pershan, J.P. Remeika. Phys. Rev. **186**, 891 (1969)
- [22] J.P. van der Ziel, J.F. Dillon, Jr., J.P. Remeika. AIP Conf. Proc. **5**, 254 (1971).
- [23] А.И. Галуза, В.В. Еременко, А.П. Кириченко. ФТТ **15**, 585 (1973).
- [24] K.W. Blazey. J. Appl. Phys. **45**, 2273 (1974).
- [25] S.H. Wemple, S.L. Blank, J.A. Seman, W.A. Biolsi. Phys. Rev. B **9**, 2134 (1974).
- [26] G.B. Scott, D.E. Lacklison, J.L. Page. Phys. Rev. B **10**, 971 (1974).
- [27] Б.Б. Кричевцов, О. Очиллов, Р.В. Писарев. ФТТ **25**, 2404 (1983).
- [28] T.K. Vien, J.L. Dormann, H. Le Gall. Phys. Stat. Sol. **71**, 731 (1975).
- [29] A.S. Moskvina, A.V. Zenkov, E.I. Yuryeva, V.A. Gubanov, Physica **B168**, 187 (1991).
- [30] В.В. Алексеев, В.В. Дружинин, Р.В. Писарев. ФТТ **33**, 2669 (1991).
- [31] G.F. Dionne, G.A. Allen. J. Appl. Phys. **73**, 6127 (1993).