

面外取向的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 磁光单晶薄膜制备及取向机理分析

杨雪 杨青慧 张怀武 文岐业 白飞明 钟智勇 张鼎 黄建涛

Preparation and orientation mechanism analysis of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ magneto-optical single crystal film with out-of-plane orientation

Yang Xue Yang Qing-Hui Zhang Huai-Wu Wen Qi-Ye Bai Fei-Ming Zhong Zhi-Yong Zhang Ding Huang Jian-Tao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 107801 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20202209

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202209>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

晶格失配应力对单晶 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜磁畴结构的影响

Effect of lattice mismatch stress on magnetic domain of epitaxial single crystal $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ film

物理学报. 2018, 67(11): 117801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180192>

N^+ 注入修复外延Fe膜面内六重磁对称

Recovering in-plane six-fold magnetic symmetry of epitaxial Fe films by N^+ implantation

物理学报. 2019, 68(12): 126102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190131>

氮化铁薄膜晶相合成热分析及其磁性

Thermal analysis on crystal phase synthesis of iron nitride film and its magnetic properties

物理学报. 2019, 68(11): 118101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182195>

双二次交换作用和各向异性对反铁磁体相变温度的影响

Effect of biquadratic exchange and anisotropy on the critical temperature of antiferromagnet

物理学报. 2020, 69(10): 107501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200077>

Verwey相变处 Fe_3O_4 的结构、磁性和电输运特性

Structure, magnetic and transport properties of Fe_3O_4 near verwey transition

物理学报. 2020, 69(4): 040505 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191763>

铁基合金薄带多次等温回火特性的研究

The characteristics of multiple isothermal tempered Fe-based alloy ribbons

物理学报. 2019, 68(13): 137501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190017>

面外取向的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 磁光单晶薄膜制备及取向机理分析*

杨雪 杨青慧† 张怀武 文岐业 白飞明 钟智勇 张鼎 黄建涛

(电子科技大学电子科学与工程学院, 成都 611731)

(2020 年 12 月 25 日收到; 2021 年 3 月 8 日收到修改稿)

铋取代石榴石 (Bi:YIG) 薄膜具有较大的比法拉第旋角, 且可通过调控其易磁化轴垂直于薄膜表面和降低材料饱和磁化强度, 使其可工作在较小外加磁场下, 进而满足磁光器件小型化、节能化的发展需求. 本文基于对石榴石薄膜磁各向异性的理论分析, 采用液相外延 (liquid-phase epitaxy, LPE) 法在钆镓石榴石 (gadolinium gallium garnet, GGG) 基底上制备了单晶 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜, 并研究了其磁各向异性性能. 研究发现, 当外延膜厚度大于 $1\ \mu\text{m}$ 时, 形状各向异性对磁各向异性产生的影响可以忽略; 随着生长温度的上升, 进入薄膜组分的 Bi^{3+} 离子数量逐渐减少, 薄膜晶格常数逐渐减小, 薄膜的受力状态从压应力状态逐渐变为张应力; 相较于生长感生各向异性, 应力诱导的各向异性在磁各向异性的变化中占主导地位. $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的 Verdet 常数为 $11.8 \times 10^4\ \text{rad/Tm}@1064\ \text{nm}$, 是常用磁光材料 TGG 的 3000 倍; 其外加工作磁场小于 200 Oe, 有利于实现磁光器件的小型化和薄膜化.

关键词: 液相外延, 磁各向异性, 晶格失配

PACS: 78.20.Ls, 85.70.Sq, 75.30.Gw

DOI: 10.7498/aps.70.20202209

1 引言

1957 年, 美国贝尔实验室首次发现了钇铁石榴石 ($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, YIG) 在近红外波段具有较低的光吸收系数和优异的磁光性能, 自此石榴石成为被广泛研究的磁光材料之一. 易磁化轴垂直于薄膜表面的石榴石膜由于其外加饱和磁场小, 可以满足磁光器件小型化、节能化的发展需求, 在磁光器件中有很大的发展潜力^[1–2].

LPE 一直是制备单晶石榴石薄膜的最佳工艺之一. 但是纯 YIG 材料的比法拉第旋角小, 且易磁化轴在膜面内, 需要较大的外加饱和场, 无法满足磁光器件的发展需求. 研究发现利用 LPE 工艺,

在 YIG 体系的十二面体位, 用单轴各向异性强的 Bi^{3+} 取代 Y^{3+} , 实现铋取代石榴石 (Bi:YIG), 可以极大提高材料的比法拉第旋角^[3], 同时可以诱导出大的生长感生各向异性, 从而使制备易磁化轴垂直于膜面的石榴石薄膜成为可能^[4–7]. Bi:YIG 凭借其优异的磁光性能, 是适用于制备磁光器件的最佳磁光材料之一.

对于 LPE 制备的石榴石膜, 一般选取同属石榴石晶系的 GGG 为衬底, 不同的生长温度会导致掺入石榴石膜中各离子含量的变化, 离子半径各不相同, 从而会引起外延膜晶格常数发生变化. 衬底与薄膜的晶格常数的差异会致使衬底与膜之间产生晶格失配, 进而影响材料的性质. 薄膜的易磁化轴的取向取决于总的磁各向异性, 其由应力各向异

* 国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0300801)、国家自然科学基金 (批准号: 51472046, 51272036, 51002021, 61131005) 和国家重大科学仪器设备开发项目 (批准号: 51827802) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yangqinghui@uestc.edu.cn

性、形状各向异性、生长感生各向异性及立方磁晶各向异性^[8]等共同决定. 如何有效地通过调节上述几种因素来调控石榴石薄膜的易磁化轴的取向是本文的研究目的. 采用 LPE 工艺以 GGG 为衬底在不同的生长温度下制备了一系列不同厚度的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜, 详细研究了其磁各向异性性能, 并对应力各向异性、生长感生各向异性、形状各向异性和立方磁晶各向异性对其性能的影响进行了理论和实验分析.

2 各向异性分析

对薄膜材料来说, 磁各向异性等效场 (H_{total}) 越大, 越有利于易磁化轴垂直于薄膜表面. LPE 法生长的单晶 $(\text{Bi}_x\text{Tm}_{3-x})(\text{Ga}_y\text{Fe}_{5-y})\text{O}_{12}$ 薄膜, 磁各向异性包括了形状各向异性、立方磁晶各向异性、生长感生各向异性和应力各向异性^[8]. 沿磁体不同的晶轴磁化到饱和状态的难易程度不一样称为磁各向异性, 磁晶各向异性主要是物体中原子或者离子的自旋与轨道之间的耦合作用产生的; 形状各向异性是由于磁体内, 当磁矩的方向一致时, 磁体表面就会产生磁极, 从而形成退磁能, 退磁能取决于磁体的形状; 通过液相外延工艺制备的石榴石膜, 因其特殊的生长条件, 磁性离子沿着特定的方向进行排列, 形成有序化, 从而呈现生长感生各向异性; 因为石榴石膜和衬底之间的晶格常数不同, 不可避免的存在晶格失配, 引起单轴应力各向异性; 应力各向异性的产生是因为应力通过磁弹性相互作用影响了磁体的磁化强度的择优取向. 应力各向异性反映的是石榴石膜内的应力的方向与饱和磁化强度矢量方向有关的特性^[9]. 磁各向异性等效场可由下列公式表示^[7,10–13]:

$$H_{\text{total}} = AK_1(x, y) + BK_u^g + CK_u^\lambda + K_{\text{shape}}, \quad (1)$$

$$K_1(x, y) = K_1(0, 0)(1 + 0.08x - 0.76y), \quad (2)$$

$$K_u^g = c(x)(a + b\Delta T_S)q(T), \quad (3)$$

$$H_A = CK_u^\lambda = -\frac{3}{2} \frac{CE}{1-v} \left[\frac{\Delta a}{a} \right] \lambda_{111}, \quad (4)$$

$$K_{\text{shape}} = -2\pi M_S^2, \quad (5)$$

(1) 式中 H_{total} 表示磁各向异性等效场, $K_1(x, y)$ 表示一阶立方磁晶各向异性常数, K_u^g 表示生长各向异性常数, K_u^λ 表示应力各向异性常数, K_{shape} 表示

形状各向异性常数; A, B, C 分别为 $K_1(x, y)$, K_u^g 和 K_u^λ 的转化系数.

由于实验选用 (111) 晶向的钆镓石榴石 (GGG) 作为衬底, 使得 (2) 式中 $K_1(0, 0) < 0$ (约为 -10^4 deg/cm^3), 立方磁晶各向异性为垂直各向异性^[14], 且与外延膜中 Bi^{3+} 的含量成正比.

(3) 式中 $c(x)$ 为膜中 Bi^{3+} 的含量, a, b 均为常数, $q(T)$ 为温度相关的函数. 生长感生各向异性主要受薄膜中的 Bi^{3+} 含量和生长温度影响, 与膜中 Bi^{3+} 的含量正相关. $K_u^g > 0$ 时, 生长感生各向异性为垂直各向异性^[15].

(4) 式中 H_A 表示应力各向异性常数, E 为杨氏模量, $\nu = 0.29$ 为泊松比, $\Delta a = a_{\text{substrate}} - a_{\text{film}}$ 为晶格失配, $a = a_{\text{substrate}}$, $a_{\text{substrate}}$ 是衬底的晶格常数, a_{film} 为外延膜在应变状态下的晶格常数, λ_{111} 为 (111) 晶向的磁滞伸缩常数 ($\lambda_{111} = -2.73 \times 10^{-6}$); 应力各向异性主要是受到膜内应力的影响, 晶格失配直接导致了膜内应力. H_A 与 Δa 成正比, $\Delta a > 0$, 外延膜受到张应力, $H_A > 0$, 其诱导的应力各向异性为垂直各向异性; $\Delta a < 0$ 时, 外延膜受到压应力, $H_A < 0$, 应力各向异性平行于膜面^[15].

(5) 式中 M_S 为外延膜饱和磁化强度, K_{shape} 与外延膜的形状有关, 且诱导的形状各向异性平行于膜面, $K_{\text{shape}} < 0$. K_{shape} 与饱和磁化强度成正比, 要实现总的磁各向异性为垂直各向异性, 则需要克服形状各向异性.

因此, 为了制备出薄膜质量好且易磁化轴垂直于膜面的薄膜, 需要做到以下几点: 1) 合理增大 Bi^{3+} 的含量, 有利于增强立方磁晶各向异性和生长各向异性; 2) 由于在 LPE 工艺中, 膜与衬底间的晶格匹配是成功制备外延厚膜的关键因素^[16], 因此合理调控膜与衬底间的晶格失配能够成功制备出单晶材料, 同时有效增大应力诱导的垂直各向异性; 3) 降低薄膜的饱和磁化强度, 从而降低形状各向异性.

3 实验

Bi^{3+} 的掺入可以增强法拉第效应, 同时可以诱导出大的生长感生各向异性^[17]. Ga^{3+} 掺入 YIG 晶体主要取代四面体的 24d 位上的 Fe^{3+} ^[18], 可以有效降低石榴石膜的饱和磁化强度. GGG(111) 的晶格常数为 12.383 \AA , YIG 的晶格常数为 12.376 \AA , 然而 Bi^{3+} (108 \AA) 的半径比 Y^{3+} (90 \AA) 的半径大,

所以 Bi^{3+} 的掺入会导致石榴石膜晶格失配增大, 为了中和掺 Bi^{3+} 引起的晶格膨胀, 所以选择了比 Y^{3+} (90 Å) 离子半径小的 Tm^{3+} (86.9 Å) 共同取代 YIG 中 Y^{3+} . 因此薄膜材料组分确定为 $\text{Tm}_{2.28}\text{Bi}_{0.72}\text{Fe}_{4.3}\text{Ga}_{0.7}\text{O}_{12}$.

选取了 GGG(111) 作为衬底, 分别在不同的生长温度下制备了一系列不同厚度的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜, 生长温度区间为 880—905 °C, 生长转速为 60 rad/min, 旋转变向时间为 5 s, 部分样品生长参数列于表 1.

采用 X 射线衍射 (XRD)、高分辨率透射电子显微镜 (TEM) 和选择性区域电子衍射研究了液相外延薄膜的晶体结构; 采用振动样磁强计 (VSM) 进行磁特性分析, $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜中 Bi^{3+} 的定量分析由电子探针显微分析 EPMA 测量, 利用法拉第测试系统对 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的磁光性能进行分析.

表 1 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 生长参数
Table 1. Growth parameters of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$.

生长温度/°C	单面膜厚 $h/\mu\text{m}$	单面膜厚 $h/\mu\text{m}$	单面膜厚 $h/\mu\text{m}$
882	1.65	4.70	7.37
888	—	5.28	7.24
893	1.22	5.20	7.15
898	1.19	5.05	7.40
901	1.23	4.92	7.13

4 结果与讨论

4.1 物相分析

图 1(a) 所示为厚度为 1 μm , 不同生长温度的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 石榴石单晶膜的 XRD 曲线. 图中横轴对应为衍射峰位角, 纵轴 Intensity 对应为衍射峰的峰强, 存在衬底 GGG 和外延薄膜两个峰; 随着生长温度的上升, 薄膜峰逐渐右移, 薄膜

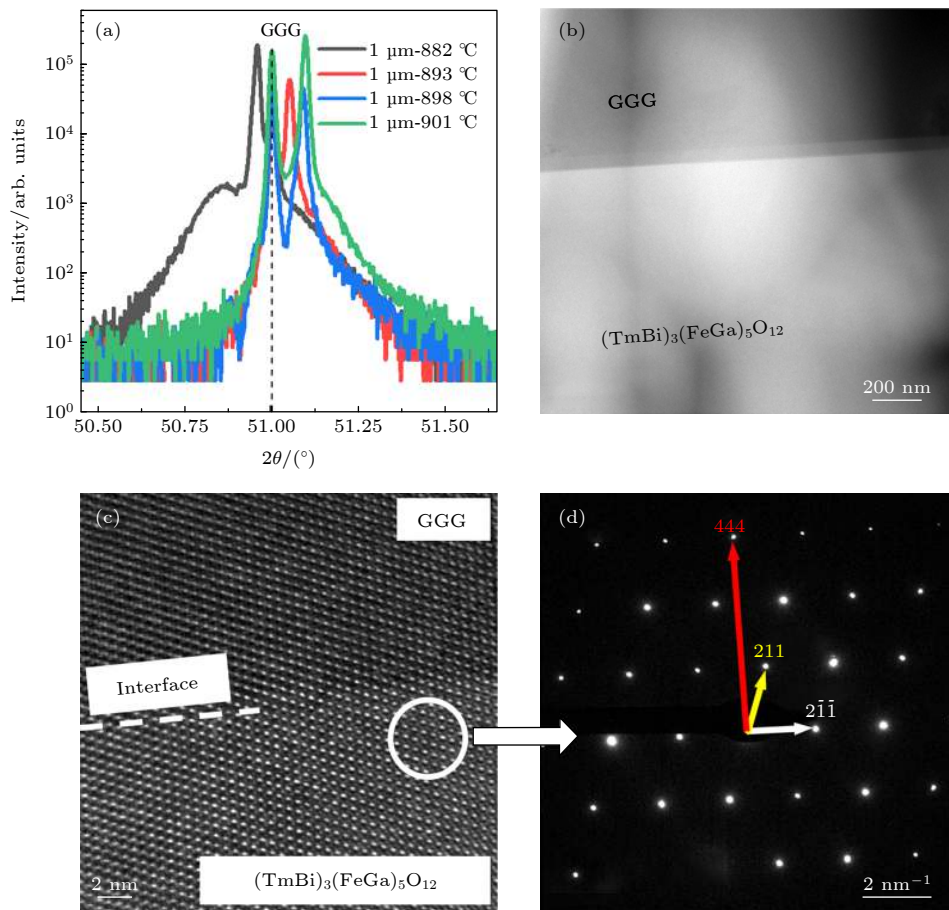


图 1 (a) 不同生长温度下 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的 XRD 测试图; (b) $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的形貌相; (c) $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的 HR-TEM 图; (d) $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的电子衍射花样

Fig. 1. (a) XRD patterns of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ films grown at different temperatures; (b) morphology and phase of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ films; (c) HR-TEM of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ film; (d) electron diffraction patterns of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ films.

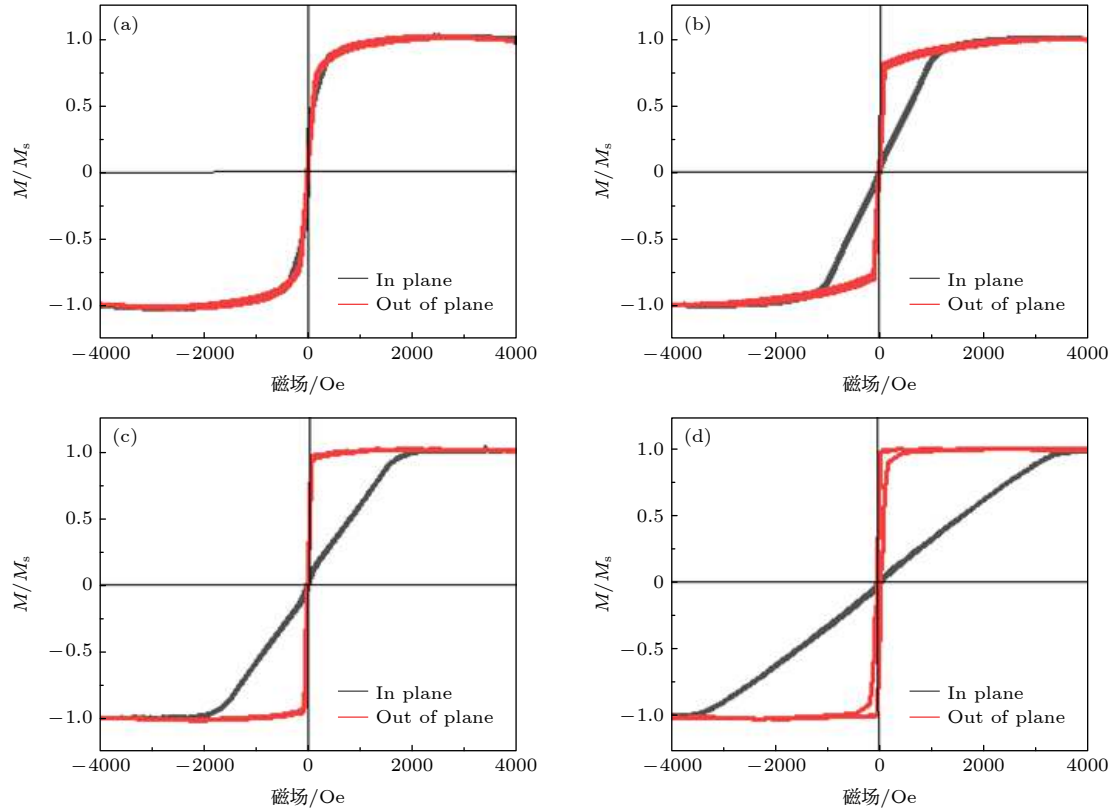


图 2 不同生长温度的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜磁滞回线 (a) $T = 882\text{ }^\circ\text{C}$; (b) $T = 888\text{ }^\circ\text{C}$; (c) $T = 893\text{ }^\circ\text{C}$; (d) $T = 901\text{ }^\circ\text{C}$; (T 表示生长温度)

Fig. 2. Hysteresis loops of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ films at different growth temperatures: (a) $T = 882\text{ }^\circ\text{C}$; (b) $T = 888\text{ }^\circ\text{C}$; (c) $T = 893\text{ }^\circ\text{C}$; (d) $T = 901\text{ }^\circ\text{C}$; (T is the growth temperature).

与衬底的晶格失配先减小后增大. 为了进一步分析所制备外延膜的晶体质量, 采用机械减薄和离子束减薄的方法制备了 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}/\text{GGG}$ 截面样. 图 1(b) 为所制备的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}/\text{GGG}$ 截面样品的透射电镜形貌像, 图 1(c) 为该截面样的 HR-TEM 图. 从图 1(b) 和 1(c) 可以看出, 外延膜和衬底间具有清晰的界面, 这表明外延膜具有较高的晶体质量. 从 HR-TEM 图可以看出, 当外延膜与衬底间晶格匹配较好时, 外延膜中几乎没有位错缺陷以及明显的点缺陷等晶体缺陷产生. 图 1(d) 所示为图 1(c) 中外延膜的选区电子衍射花样, 清晰的单晶电子衍射花样表明了该外延膜为单晶结构.

4.2 磁各向异性的分析

对厚度为 $5\text{ }\mu\text{m}$, 不同生长温度的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 石榴石单晶膜进行了磁滞回线测试, 测试结果如图 2 所示. 测试过程中, 外加磁场平行于薄膜表面时的饱和场大小为面内饱和场, 外加磁场垂直于薄膜表面时的饱和场大小为面外饱和场. 磁各向异性等效场由薄膜面内饱和场磁场强度

减去面外饱和场得到. 可见, 随着生长温度升高, 薄膜取向逐渐偏向面外, H_{total} 逐渐增大.

图 3 给出了当膜厚为 $1\text{ }\mu\text{m}$ 、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 、 $7\text{ }\mu\text{m}$ 时, 不同生长温度 (Growth temperature) 下的 H_{total} , 所有样品的 H_{total} 均大于 0, 薄膜始终处于面外各向异性, 且随着温度的上升, 面外各向异性逐渐增强; 薄膜厚度分别为 $1\text{ }\mu\text{m}$ 、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 、 $7\text{ }\mu\text{m}$ 的 $(\text{BiTm})_3$

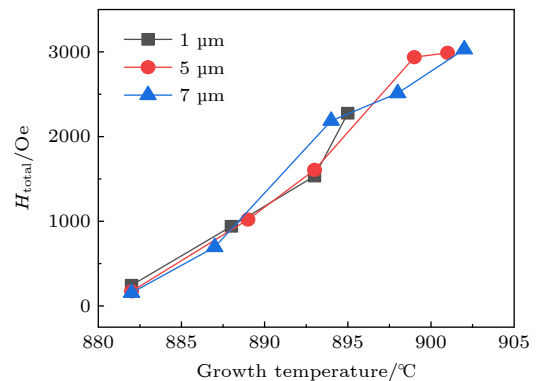


图 3 不同厚度的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜在不同生长温度下的 H_{total}

Fig. 3. H_{total} of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ films with different thickness at different growth temperatures.

(GaFe)₅O₁₂ 石榴石单晶膜对应的相同生长温度的 H_{total} 几乎相同. 因此我们得出结论: LPE 制备的 (BiTm)₃(GaFe)₅O₁₂ 膜当厚度大于等于 1 μm 时, 其 H_{total} 随着温度的上升逐渐增大, 且其形状各向异性的改变对磁各向异性产生的影响, 可以忽略; 生长温度对其影响很大, 可以推测 H_{total} 的变化主要来源于生长感生各向异性、立方磁晶各向异性和应力各向异性的影响.

4.3 应力各向异性与生长感生各向异性分析

为了区分生长感生各向异性、立方磁晶各向异性和应力各向异性在面外取向中的作用, 分析了薄膜中离子含量的变化对其影响. 对于 LPE 生长的薄膜, 不同生长温度导致进入晶格的离子含量发生变化, 从而引起薄膜的晶格常数发生变化. $\Delta\theta$ 为 GGG 和外延膜的衍射位差, 可以直接在 XRD 图谱 (图 1(a)) 中读出来, 薄膜峰位于基片峰的左边的时候, 薄膜处于压应力状态, 薄膜峰处于右边的时候, 薄膜处于张应力状态. 测试结果表明随着温度的上升, 薄膜峰逐渐右移, 薄膜的晶格常数逐渐减小, 薄膜与衬底的晶格失配先减小后增大; 外延膜与衬底间的晶格失配可由 $\Delta a = a_{\text{substrate}} - a_{\text{film}}$ 表示, 其中 GGG (111) 衬底的晶格常数为 $a_{\text{substrate}} = 12.383 \text{ \AA}$, 外延膜的晶格常数为 [14]

$$\theta_{\text{film}} = \theta_{\text{substrate}} + \frac{\Delta\theta}{2}, \quad (6)$$

$$a_{\text{film}} = \frac{\sin(\theta_{\text{substrate}})}{\sin(\theta_{\text{film}})} a_{\text{substrate}}, \quad (7)$$

θ_{film} 和 $\theta_{\text{substrate}}$ 分别为外延膜和衬底 GGG(111) 的半衍射峰位角, $\Delta\theta$ 在 XRD 图谱上可以直接读出; 不同生长温度下 (BiTm)₃(GaFe)₅O₁₂ 膜与衬底的晶格失配通过计算, 结果列于表 2.

表 2 (BiTm)₃(GaFe)₅O₁₂ 膜的晶格常数 (a_{film}) 和晶格失配 (Δa)

Table 2. Lattice constant film (a_{film}) and lattice mismatch (Δa) of (BiTm)₃(GaFe)₅O₁₂.

生长温度/ $^{\circ}\text{C}$	$a_{\text{substrate}}/\text{\AA}$	$a_{\text{film}}/\text{\AA}$	$\Delta a/\text{\AA}$
882	12.383	12.392	-0.009
893	12.383	12.371	0.012
898	12.383	12.363	0.020
901	12.383	12.361	0.022

由表 2 可知, 随着生长温度的上升, 晶格失配逐渐增大, 结合 (4) 式可知, H_A 和 Δa 成正比, 随

着生长温度的上升, 应力诱导的单轴各向异性逐渐增强, 有利于薄膜的面外各向异性的增强.

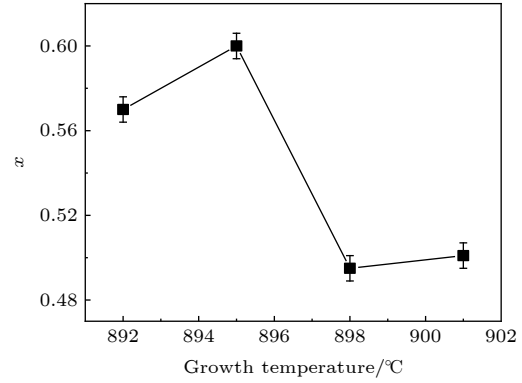


图 4 不同生长温度下的 (Bi_xTm_{3-x})(Ga_yFe_{5-y})O₁₂ 膜中的 x
Fig. 4. x in (Bi_xTm_{3-x})(Ga_yFe_{5-y})O₁₂ films at different growth temperatures.

采用了电子探针显微分析 (EPMA) 针对厚度为 5 μm 、不同生长温度下的 (Bi_xTm_{3-x})(Ga_yFe_{5-y})O₁₂ 石榴石单晶薄膜中的 Bi³⁺ 含量 (x) 进行了定量分析, EPMA 测量结果如图 4 所示. 随着生长温度的上升, Bi³⁺ 含量总体逐渐降低, 这与在 (Bi_xTm_{3-x})(Ga_yFe_{5-y})O₁₂ 随着生长温度的上升, x 逐渐减小 [5] 相符合; 结合 (3) 式和 (2) 式可知, 生长感生各向异性与生长温度和 Bi³⁺ 的含量成正比, 立方磁晶各向异性与 Bi³⁺ 的含量成正比, 由此得出 (BiTm)₃(GaFe)₅O₁₂ 石榴石单晶薄膜随着生长温度的上升, 生长诱导的面外各向异性与立方磁晶各向异性逐渐减弱.

总之, LPE 制备的 (BiTm)₃(GaFe)₅O₁₂ 单晶薄膜, 当其厚度大于 1 μm 的, 形状各向异性可忽略, H_{total} 的变化主要是受生长感生各向异性和应力各向异性的影响. 随着生长温度的上升, Bi³⁺ 含量逐渐降低, 生长感生各向异性和立方磁晶各向异性逐渐降低, 但其总的磁各向异性场 H_{total} 增大, 与应力各向异性等效场 H_A 变化趋势一致. 因此, 对于 (BiTm)₃(GaFe)₅O₁₂ 单晶膜, 应力对 H_{total} 的改变占主导地位.

4.4 法拉第效应分析

因为 Bi:YIG 膜主要应用于磁光器件, 所以有必要对其磁光性能进行分析. 在同一入射波长下, 法拉第旋角与 Bi³⁺ 含量正相关. Bi³⁺ 取代 Y³⁺, 带隙变小, 基态电子跃迁成激发态电子的可能性增大, 从而促进自旋轨道增加 [19–20]. 电子科技大学郝

俊祥^[21]对 YIG 和 BIG 的态密度分析得出当 Bi^{3+} 离子完全取代 Y^{3+} 离子时, BIG 的 Fe 3d 和 O 2p 能带的导带分别为 $-6.8\text{--}3.2\text{ eV}$ 和 $-6.8\text{--}6.1\text{ eV}$, Bi 6p 能带为 $-6.8\text{--}6.1\text{ eV}$; 而 YIG 的 Fe 3d 和 O 2p 能带的导带分别为 $-8.3\text{--}4\text{ eV}$ 和 $-8.3\text{--}3.6\text{ eV}$, Y 4d 能带为 $-5\text{--}10\text{ eV}$; 相较于 YIG, BIG 的带隙变小, 且 BIG 的 Fe 3d 能带带宽变窄, O 2p 能带带宽变宽, Fe 3d 轨道与 Bi 6p 轨道均与 O 2p 轨道完全重合; 轨道重合越大, 越有利于轨道杂化和自旋轨道的分裂, 从而引起法拉第效应的增大.

通过法拉第测试系统对膜厚为 $5\text{ }\mu\text{m}$, 不同生长温度下的膜进行的法拉第旋角 (θ_f) 的测试: 入射波长为 1310 nm , 外加磁场 (H) 垂直于膜面, 测试结果如图 5(a) 所示, 图中 H 为外磁场. 结果表明, 生长温度为 $888\text{ }^\circ\text{C}$ 的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的 θ_f 最大, 为 $0.075\text{ }(^{\circ})/\mu\text{m}$, 在生长温度为 $898\text{ }^\circ\text{C}$ 时, θ_f 最小, 为 $0.043\text{ }(^{\circ})/\mu\text{m}$; 随着温度的上升, θ_f 逐渐

减小. 结合图 4 可知随着生长温度的上升, 膜内 Bi^{3+} 离子含量逐渐减少, 从而致使 θ_f 减少. 图 5(b) 是对 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜和 TGG 在入射波长为 1064 nm 的法拉第测试回线, 外加磁场垂直于膜面, 可以看出 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的外加饱和和磁场约为 200 Oe . θ_f 、 H 、光程 L 与 Verdet (V) 常数的关系为

$$V = \theta_f / (L \cdot H). \quad (8)$$

由公式计算 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的 Verdet 常数为 $11.8 \times 10^4\text{ rad/Tm}$, 远大于常用 TGG 磁光材料的 Verdet 常数 (31.4 rad/Tm). 因此 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜凭借其可调控的面外取向性能、很小的外工作磁场和优越的磁光性能, 在磁光器件中具有很大的发展潜力.

5 结 论

本文采用 LPE 法制备了不同生长温度和厚度的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜, 研究了影响 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜易磁化轴取向的相关因素. 实验结果表明, 当膜厚大于等于 $1\text{ }\mu\text{m}$ 时, 形状各向异性的变化对膜的磁各向异性产生的影响可以忽略, H_{total} 主要受到应力各向异性、生长感生各向异性和立方磁晶各向异性的影响. 随着生长温度的上升, 外延膜中 Bi^{3+} 的含量逐渐降低, 薄膜的晶格常数发生变化, 薄膜的受力状态从压应力状态逐渐变为张应力; 应力诱导的各向异性有利于增强 H_{total} , 而生长感生各向异性和立方磁晶各向异性则逐渐减弱, H_{total} 与 H_A 的变化规律一致, 应力诱导的磁各向异性是影响膜易磁化轴取向的主要原因; Bi^{3+} 离子的取代可以极大地提高石榴石膜的比法拉第旋角, 通过法拉第测试结果, 可以看出薄膜的 θ_f 随着温度的上升, 逐渐减小, 这与 Bi^{3+} 随着温度的变化规律一致. 易磁化轴为面外的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜在入射波长为 1064 nm 时, 其 Verdet 常数为 $11.8 \times 10^4\text{ rad/Tm}$, 面外饱和场小于 200 Oe , 其磁光性能优异. 为节能、薄膜化的新一代磁光器件提供了良好的材料支撑.

参考文献

- [1] Paroli P 1984 *Thin Solid Films* **114** 187
- [2] Aichele T, Lorenz A, Hergt R, Goernert P 2003 *Cryst. Res. Technol.* **38** 575

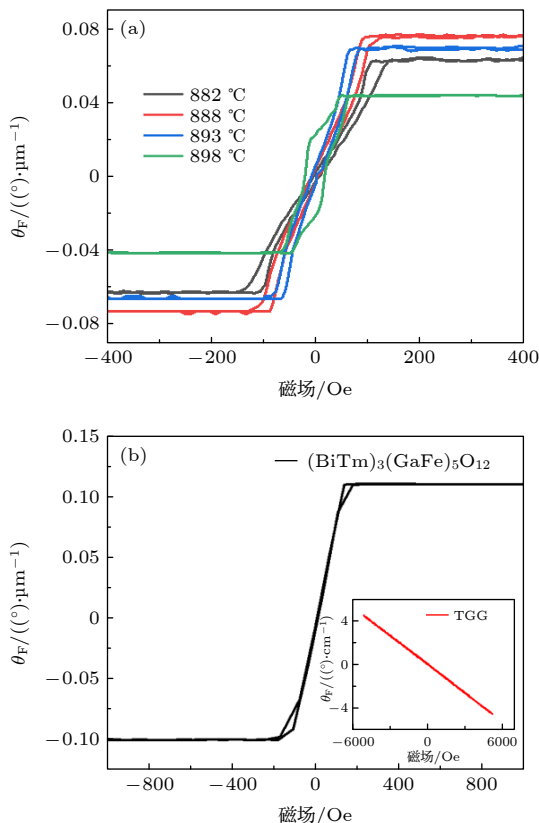


图 5 (a) 不同生长温度下的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜的法拉第旋角测试回线; (b) 同一入射波长下的 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜和 TGG 的法拉第旋角测试回线

Fig. 5. (a) Faraday angle test loop of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ films at different growth temperatures; (b) Faraday angle test loop of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ film and TGG at the same incident wavelength.

- [3] Wang H Y, Zhang P X, Zhang X X, Xu X Z 1981 *Acta Phys. Sin.* **30** 1554 (in Chinese) [王焕元, 张鹏翔, 张绪信, 徐孝贞 1981 物理学报 **30** 1554]
- [4] Hansen P, Klages C P, Witter K 1988 *J. Appl. Phys.* **63** 2058
- [5] Hansen P, Witter K 1985 *J. Appl. Phys.* **58** 454
- [6] Zenkov A V, Moskvina A S 2002 *J. Phys. Condens. Mat.* **14** 6957
- [7] Hansen P, Tolksdorf W, Witter K 1984 *IEEE Trans. Magn.* **20** 1099
- [8] Capper P, Mauk M 2007 *Liquid Phase Epitaxy of Electronic, Optical and Optoelectronic Materials* (England: John Wiley & Sons Ltd) pp333–334
- [9] Wan D F, Ma X L 1994 *Magnetic Physics* (Chengdu: University of Electronic Science and Technology Press) pp150–205 (in Chinese) [宛德福, 马兴隆 1994 磁性物理学 (第一版) (成都: 电子科技大学出版社)第150—205页]
- [10] Kubota M, Tsukazaki A, Kagawa F, Shibuya K, Tokunaga Y, Kawasaki M, Tokura Y 2012 *Appl. Phys. Express* **5** 103002
- [11] Ortiz V H, Aldosary M, Li J, Xu Y, Lohmann M I, Sellappan P, Kodera Y, Garay J E, Shi J 2018 *APL Mater.* **6** 121113
- [12] Hansen P, Witter K, Tolksdorf W 1984 *J. Appl. Phys.* **55** 1052
- [13] Hoekstra B, Robertson J M, Stacy W T 1977 *Mater. Res. Bull.* **12** 53
- [14] Adachi N, Yamaguchi T, Okuda T, Machi T, Koshizuka N 2004 *J. Magn. Magn. Mater.* **272** 2255
- [15] Hao J X, Yang Q H, Zhang H W, Wen Q Y, Bai F M, Zhong Z Y, Jia L J, Ma B, Wu Y J 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 117801 (in Chinese) [郝俊祥, 杨青慧, 张怀武, 文岐业, 白飞明, 钟智勇, 贾利军, 马博, 吴玉娟 2018 物理学报 **67** 117801]
- [16] Matthews J W, Klokholm E 1972 *Mater. Res. Bull.* **7** 213
- [17] Wu Y J, Yang Q H, Zhang D, Zhang Y J, Rao Y H, Wen Q Y, Syvorotka I I, Zhang H W 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **506** 166689
- [18] Zhang G R, Cheng Y, Zhang X L, Xia T, Xue L P 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2601 (in Chinese) [张国营, 程勇, 张学龙, 夏天, 薛刘萍 2006 物理学报 **55** 2601]
- [19] Wei J, Hu H, He H 1998 *Phys. Status solidi A* **168** 501
- [20] Dionne G F, Allen G A 1993 *J. Appl. Phys.* **73** 6127
- [21] Hao J X 2018 *M. S. Thesis* (Chengdu: University of Electronic Science and Technology) (in Chinese) [郝俊祥 2018 硕士学位论文 (成都: 电子科技大学)]

Preparation and orientation mechanism analysis of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ magneto-optical single crystal film with out-of-plane orientation*

Yang Xue Yang Qing-Hui[†] Zhang Huai-Wu Wen Qi-Ye Bai Fei-Ming
Zhong Zhi-Yong Zhang Ding Huang Jian-Tao

(School of Electronic Science and Engineering, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China)

(Received 25 December 2020; revised manuscript received 8 March 2021)

Abstract

Liquid-phase epitaxy (LPE) is one of the best techniques for the preparation of single crystal garnet films. However, the specific Faraday rotation angle of Yttrium iron garnet (YIG) is small, and its easy magnetization axis is parallel to the film surface. The YIG requires a large external saturation field, which cannot meet the development needs of magneto-optical devices. It is found that Bi-substituted YIG(Bi:YIG) film has a larger specific Faraday angle. By adjusting the easy magnetization axis of Bi: YIG perpendicular to the film surface, the saturation magnetization of Bi: YIG can be reduced, so that it can work under a small external magnetic field. This meets the development needs of miniaturization and energy saving of magneto-optical device. The saturation magnetization of garnet film can be effectively reduced by substituting Ga^{3+} for YIG crystal, mainly for Fe^{3+} at the 24d position of its tetrahedron. And the lattice constants of $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG) and YIG are 1.2383 nm and 1.2376 nm, respectively. However, the radius of Bi^{3+} (10.8 nm) is larger than that of Y^{3+} (9.0 nm), the lattice mismatch of garnet film increases with the incorporation of Bi^{3+} . In order to neutralize the lattice expansion caused by Bi^{3+} , Tm^{3+} (8.69 nm) with a radius smaller than that of Y^{3+} (9.0 nm) is selected. Based on the theoretical analysis of the magnetocrystalline anisotropy of garnet film, $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ mono-crystalline films with different growth temperatures and different thickness values are grown by LPE on GGG (111) substrates. The experimental results show that when the thickness of epitaxial film is greater than 1 μm , the influence of shape anisotropy on magnetocrystalline anisotropy can be ignored. With the increase of growth temperature, the substitution number of Bi^{3+} ions decreases gradually, the lattice constant of epitaxial film decreases gradually, and the lattice mismatch first decreases and then increases. Then, the state of compressive stress gradually changes into that of tensile stress. Compared with growth-induced anisotropy, the stress-induced anisotropy is dominant in the change of magnetocrystalline anisotropy. The Verdet constant of $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ film is $11.8 \times 10^4 \text{ rad/Tm}@1064 \text{ nm}$. The results show that the prepared $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ mono-crystalline films have great development potential in magneto-optical devices.

Keywords: liquid-phase epitaxy, magnetocrystalline anisotropic, lattice mismatch

PACS: 78.20.Ls, 85.70.Sq, 75.30.Gw

DOI: 10.7498/aps.70.20202209

* Project supported by the National Key Research and Development Plan (Grant No. 2016YFA0300801), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51472046, 51272036, 51002021, 61131005), and the National Key Scientific Instrument and Equipment Development Project (Grant No. 51827802).

[†] Corresponding author. E-mail: yangqinghui@uestc.edu.cn