

ГИГАНТСКИЙ МАГНИТОРЕФРАКТИВНЫЙ ЭФФЕКТ В ПЛЕНКАХ $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

А. Б. Грановский^{a*}, Ю. П. Сухоруков^{b**}, А. В. Телегин^b, В. Д. Бессонов^b, Е. А. Ганьшина^a,
А. Р. Кауль^a, И. Е. Корсаков^a, О. Ю. Горбенко^a, Х. Гонзалес^{c***}

^a *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия*

^b *Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук
620990, Екатеринбург, Россия*

^c *Departamento Fisica de Materiales, Facultad de Quimica, Universidad del Pais Vasco
20009, San Sebastian, Spain*

Поступила в редакцию 1 июня 2010 г.

Комплексные экспериментальные исследования структурных, оптических, магнитооптических свойств (магнитопротекание, магнитоотражение и экваториальный эффект Керра) и магнитосопротивления эпитаксиальных пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ показали, что магнитоотражение и магнитопротекание в пленках манганитов могут достигать гигантских значений, сильно зависят от магнитной и зарядовой однородности пленок, их толщины и спектральной области исследований. Показано, что по сравнению с кристаллами манганитов, в тонких пленках происходит оптическое усиление магниторефрактивного эффекта. В области минимума коэффициента отражения вблизи первой фоновой полосы обнаружено появление резонансноподобного магниторефрактивного эффекта, которое сопровождается сменой знака магнитоотражения. В рамках теории магниторефрактивного эффекта предложена модель, на качественном уровне объясняющая указанное поведение.

1. ВВЕДЕНИЕ

Возможность быстродействующего управления распространением и поляризацией света является предметом интенсивных исследований в связи с развитием оптических методов передачи и обработки информации, голографии, оптических компьютеров, бесконтактных сенсоров и др. Наиболее высоким быстродействием характеризуются магнитные материалы, для которых переориентация магнитного момента или их намагничивание может осуществляться за времена заведомо меньшие наносекундного диапазона. Эффективность быстродействующего управления направлением распространения и модуляцией света с помощью магнитного поля и магнитооптических эффектов, в том числе с использо-

ванием магнитофотонных кристаллов, подтверждена экспериментально [1].

Однако традиционные магнитооптические эффекты Фарадея и Керра малы в силу их релятивистского происхождения [2]. Поэтому необходим поиск новых магнитооптических эффектов и соответствующих функциональных материалов для решения этой проблемы. Одним из таких перспективных эффектов является магниторефрактивный эффект (МРЭ), заключающийся в изменении отражения, пропускания (поглощения) естественного света под действием магнитного поля в магнитных материалах, обладающих значительным магнитосопротивлением (МС) (см. [1, 3, 4]). В отличие от традиционных магнитооптических явлений МРЭ не связан со спин-орбитальным взаимодействием и поэтому магнитоотражение и магнитопротекание света за счет МРЭ может достигать гигантских для магнитооптики значений 10–20 % [3, 4]. Наиболее яр-

*E-mail: granov@magn.ru

**E-mail: suhorukov@imp.uran.ru

***J. Gonzalez

ко МРЭ проявляется в манганитах с колоссальным МС [5–14]. Это связано с тем, что в манганитах МС достаточно велико, а их электрические свойства восприимчивы к действию внешнего магнитного поля, вплоть до изменения типа проводимости. В силу этого возникают трудности описания эффектов магнитоотражения и магнитопротекания света в манганитах, особенно в пленках, поскольку развитая теория МРЭ применима только для металлической [15] и туннельной проводимости [16] и не учитывает эффектов, связанных с изменением в магнитном поле соотношения различных магнитных фаз, концентрации носителей заряда, сдвигом края поглощения, изменением эффективной массы поляронов [10, 17] и др. Для пленок манганитов противоречивы и явно недостаточны экспериментальные данные, которые имеются либо только для магнитоотражения (см., например, [7, 14]), либо для магнитопротекания (см. работы [11–13] и ссылки в них) часто в ограниченном интервале длин волн, полей и температур без сопоставления с данными для кристаллов того же состава и анализа для пленок разной толщины. Недавно нами были выполнены комплексные исследования магнитоотражения в кристаллах $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ [10] и было показано, что магнитоотражение в этом случае при температурах близких к температуре Кюри является оптическим откликом колоссального МС. Это исследование явилось необходимым этапом изучения магнитоотражения и магнитопротекания пленок манганитов того же состава, которому и посвящена данная работа. В работе показано, что толщина пленок, их неоднородность, обусловленная, вероятно, как нестехиометрией по кислороду, так и деформационными напряжениями, оказывает сильное влияние на спектры, величину и даже знак изучаемых магнитооптических явлений, на отражение и пропускание света. Оптическое усиление магнитооптических эффектов в пленках за счет неоднократного прохождения света через пленку приводит к гигантским значениям эффектов магнитоотражения и магнитопротекания, достигающим 10–20%. Более того, выполненное исследование демонстрирует, что значительных величин магнитоотражения и магнитопротекания света в манганитах можно добиться в окрестности оптического резонанса. Это, с одной стороны, позволяет объяснить наличие МРЭ в видимой области спектра для некоторых составов [5–7], а с другой стороны, позволяет значительно расширить спектральную область возможных применений МРЭ, тогда как ранее считалось [3, 4], что она ограничена только ближним ИК-диапазоном.

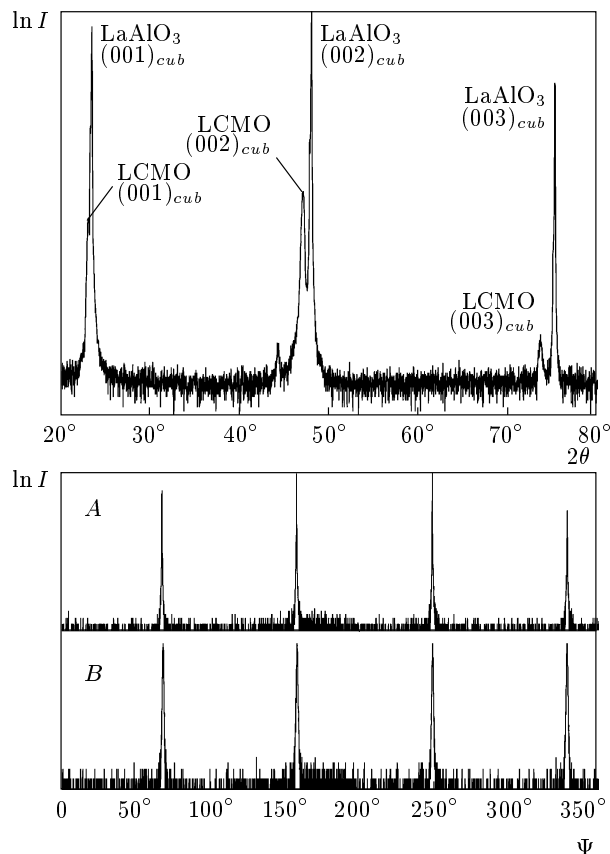


Рис. 1. Вверху — рентгеновская дифрактограмма пленки $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ толщиной 180 нм (LCMO) на подложке LaAlO_3 (001). Внизу — Ψ -сканы рефлексов: A — подложка LaAlO_3 , B — пленка $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

2. ОБРАЗЦЫ И УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

В качестве объекта для исследований был выбран состав $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, физические свойства которого изучены детально, что облегчило проведение сравнительного анализа природы МРЭ в пленках и кристаллах [10]. Тонкие эпитаксиальные пленки $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ были выращены методом химического осаждения из паров металлоорганических соединений (МОСVD) на монокристаллических подложках LaAlO_3 (001)_{cub}, как описано в работе [18]. В одинаковых экспериментальных условиях была приготовлена серия пленок с толщинами 50, 180 и 320 нм. После осаждения пленки были отожжены в течение часа в потоке кислорода при температуре 800 °С. Рентгеновская дифракция (рис. 1) показывает, что пленки содержат единственную фазу — высокоориентированный манганит $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ в ориентации (001)_{cub}. Определенный из рентгено-

граммы (рис. 1) параметр решетки пленки составил $c = 0.3857(1)$ нм. Для кривой качания рефлекса $(002)_{cub}$ пленки величина FWHM (ширина пика на полувысоте) составляет 0.11° . Ψ -сканы рефлексов $(110)_{cub}$ подложки LaAlO_3 и пленки $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ (рис. 1) демонстрируют высокое эпитаксиальное качество пленки с характером роста «куб на кубе».

Толщина пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ сравнима с толщиной скин-слоя, вследствие чего для определения эффективной температуры Кюри (T_C^*) мы использовали экваториальный эффект Керра как наиболее удобный метод определения температуры магнитного упорядочения тонких пленок и поверхностных структур. Эффект Керра исследовался при угле падения света 67° в энергетическом интервале от 1.5 до 4.2 эВ, температурном интервале от 30 до 350 К и в магнитных полях до 3.5 кЭ. По методике, описанной в работе [19], экспериментально измерялось относительное изменение интенсивности отраженного от образца p -поляризованного света $\delta = [I_H - I_0]/I_0$, где I_H и I_0 — интенсивности отраженного поляризованного света при наличии и в отсутствие магнитного поля.

Оптические свойства пленок изучались с помощью высокочувствительного ИК-спектрометра в диапазоне длин волн $0.8 \text{ мкм} \leq \lambda \leq 27 \text{ мкм}$ при температурах от 80 до 380 К. В конструкции спектрометра предусмотрена возможность измерения коэффициента отражения света в магнитном поле до $H = 3.5$ кЭ при ориентации поля вдоль поверхности образца и коэффициента пропускания света в поле до $H = 10$ кЭ при ориентации поля перпендикулярно поверхности образца. Относительная погрешность определения пропускания и отражения света составляла 0.1 %.

Коэффициенты зеркального отражения R пленок определялись по отношению к отражению от Al-зеркала ($R = I_s/I_{Al}$, где I_s и I_{Al} — интенсивности света отраженного от образца и от Al-зеркала) и исследовались при падении естественного света близком к нормальному ($\sim 7^\circ$). Образец и Al-зеркало находились в одной плоскости.

Коэффициент поглощения K рассчитывался в двулучевом приближении на основании закона Бугера–Ламберта, согласно которому

$$K = (1/d) \ln[(1 - R_1)(1 - R_{12})/T], \quad (1)$$

где R_1 — коэффициент отражения границы вакуум–пленка, принятый равным коэффициенту отражения кристалла $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ [10], R_{12} — коэффициент отражения границы пленка–подложка, рас-

считанный с учетом измеренного коэффициента отражения пленки R :

$$R_{12} = [(R - R_1)/(1 - RR_1)], \quad (2)$$

а T — коэффициент пропускания света, равный отношению интенсивности прошедшего через образец света I к интенсивности падающего света I_0 .

Отражение от границы подложка–вакуум не учитывалось ввиду сильного поглощения пленки и малой величины коэффициента отражения подложки. Отметим, что коэффициент отражения границы воздух–пленка может отличаться от соответствующего коэффициента для границы воздух–кристалл из-за различия в качестве поверхностей кристалла и пленки. Также для более точного определения коэффициента поглощения следовало бы учитывать не двукратное, а многократное прохождение света через пленку.

Удельное электросопротивление ρ измерялось двухконтактным методом в магнитных полях, направленных перпендикулярно току, вдоль и перпендикулярно плоскости пленки. Серебряные контакты припаивались к пленкам In-припоем с помощью ультразвукового паяльника.

Магнитопропускание, магнитоотражение и магнитосопротивление определялись соответственно как

$$\Delta I/I = (I_H - I_0)/I_0, \quad \Delta R/R = (R_H - R_0)/R_0,$$

$$\Delta \rho/\rho = (\rho_H - \rho_0)/\rho_0.$$

Полевые и спектральные зависимости $\Delta I/I$ и $\Delta R/R$ измерялись при температурах, когда эти параметры достигают максимальных значений.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Спектр экваториального эффекта Керра исследуемых пленок при $T = 40$ К (для пленки $d = 50$ нм вставка на рис. 2) имеет вид, характерный для спектров объемных кристаллов и пленок состава $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ (см. [10–12] и ссылки в них). Магнитооптические спектры в исследуемом диапазоне энергий в монокристаллах, поликристаллических керамиках и пленках легированных манганитов лантана определяются переходами в октаэдрических комплексах $[\text{MnO}_6]^{9-}$ и/или ионах $\text{Mn}^{+3}/\text{Mn}^{+4}$ [12]. Форма спектра эффекта Керра слабо зависит от толщины пленки, а величина эффекта в максимуме при

Таблица. Параметры эпитаксиальных пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

d , нм	T_C^* , К	T_ρ , К	T_I , К	T_R , К	$T_{M\rho}$, К	T_{MI} , К	T_{MR} , К	МС, %	МП, %	МО, %
50	275	265	265	255	255	255	255	37	10	+12/ - 18
180	270	265	270	255	255	255	255	30	14	+22/ - 2
320	265	230	180	—	230	180	—	18	10	—

Примечание. T_C^* — эффективная температура Кюри, T_ρ — температура максимумов удельного электросопротивления, T_I — пропускания ИК-излучения при длине волны $\lambda = 6$ мкм, T_R — отражения при $\lambda = 13$ мкм, $T_{M\rho}^{max}$ — магнитосопротивления, T_{MI}^{max} — магнитопропускания, T_{MR}^{max} — магнитоотражения и максимальных величин магнитосопротивления (МС), магнитопропускания (МП) при $\lambda = 6$ мкм в поле 8 кЭ и магнитоотражения (МО) в поле 3 кЭ

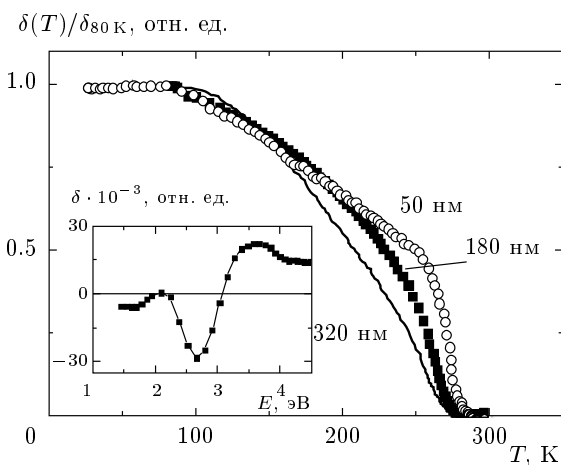


Рис. 2. Температурные зависимости эффекта Керра пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ в магнитном поле 3.5 кЭ при энергии 2.7 эВ. На вставке — спектр эффекта Керра для пленки толщиной 50 нм при $T = 40$ К

$E = 2.7$ эВ при увеличении толщины пленки более чем в 3 раза изменилась на 15 %.

3.2. Температурные зависимости эффекта Керра отражают изменение намагниченности пленок различной толщины. На рис. 2 приведены нормированные температурные зависимости $\delta(T)/\delta(80 \text{ К})$, позволяющие определить эффективную температуру Кюри (T_C^*) по температуре начала резкого роста эффекта (см. таблицу), положение которой близко к T_C образца. Затянутый рост $\delta(T)/\delta(80 \text{ К})$ в области низких температур может быть связан с температурным смещением отрицательного максимума в спектре [11] и вкладом эффекта от большей по объему ферромагнитной фазы с более низкой T_C^* . В области температур близких к T_C^* поведение кривых $\delta(T)$ зависит от

толщины пленок, что свидетельствует об их разной электронной и магнитной неоднородности. О большей неоднородности тонкой пленки по сравнению с пленкой толщиной 180 нм свидетельствует наличие ферромагнитной фазы с $T_C^* > T_C = 270 \text{ К}$ для объемных материалов $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ [20]. Пленка толщиной 320 нм является наиболее зарядово- и магнитно-неоднородной из исследованных, так как она обладает меньшими значениями T_C^* и намагниченности из зависимости $\delta(T)/\delta(80 \text{ К})$. Аналогичное изменение степени неоднородности с увеличением толщины в пленках манганитов ранее наблюдалось для состава La_xMnO_3 [21]. Вывод о степени магнитной неоднородности пленок подтверждается ниже приведенными данными по магнитопропусканию и магнитосопротивлению.

3.3. Спектры коэффициента зеркального отражения на рис. 3а приведены для пленки $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ толщиной $d = 180$ нм, объемного кристалла $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ и подложки LaAlO_3 . Хотя подложка и кристалл имеют структуру перовскита, спектральные положения интенсивных фоновых линий для них смещены друг относительно друга и это сказывается на спектре отражения пленок. Так, в парамагнитной области положения минимума коэффициента отражения для пленки и кристалла в окрестности первой фоновой полосы при $d = 14$ мкм совпадают, но вблизи второй фоновой полосы ($d = 22.5$ мкм) у пленки имеется четко выраженный максимум, отсутствующий у кристалла. В целом спектр отражения пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ вблизи T_C^* имеет вид, характерный для соединений с малой подвижностью носителей заряда (подобно ферритам [22] и другим пленкам манганитов [23]). Вдали от T_C^* в ферромагнитной области в пленках, как и в кристаллах, наблюдается характерный для легированных манганитов рост коэффициента отра-

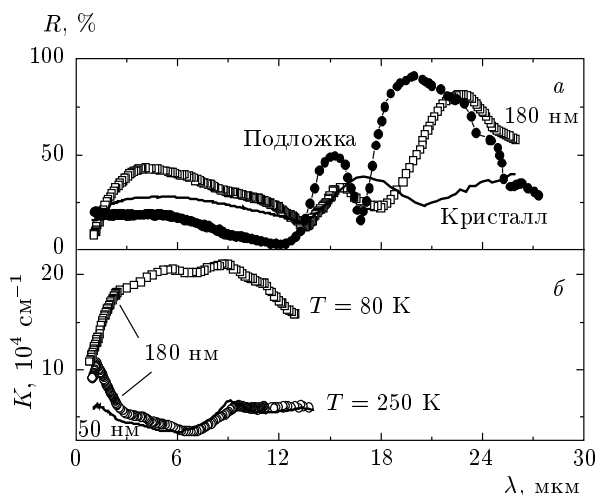


Рис. 3. а) Спектры зеркального отражения кристалла и пленки $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ толщиной 180 нм и монокристаллической подложки LaAlO_3 при температуре $T = 295$ К, б) спектры поглощения пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ при разных температурах

жения (на рисунке не показано), связанный с вкладом свободных носителей заряда и максимально выраженный в минимуме перед фоновым спектром.

3.4. Спектры поглощения пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ (рис. 3б) подобны спектрам, полученным для легированных манганитов лантана. В парамагнитной области коротковолновый рост коэффициента поглощения формируется краем поглощения и вкладом резонансоподобной полосы при $\lambda \approx 1.15$ мкм, связанной с возбуждением поверхностных плазмонов на границе неоднородностей (например, [21, 24]). Полоса поглощения при $\lambda \approx 9$ мкм связана с переходами в дырочных псевдо-ян-теллеровских комплексах $[\text{MnO}_6]_{JT}^{8-}$ [12]. Важным является то, что в ферромагнитной области сильный вклад поглощения свободными носителями заряда приводит к существенному увеличению поглощения в среднем ИК-диапазоне и изменению вида спектра (например, для пленки $d = 180$ нм рис. 3б). Такое поведение спектра поглощения от температуры является характерным для манганитов с колоссальным МС (см., например, работу [12] и ссылки в ней), но более наглядно оно проявляется в температурных зависимостях пропускания и отражения света.

3.5. Температурные зависимости отражения, пропускания света и удельного электросопротивления для пленок толщиной 50, 180 и 320 нм приведены на рис. 4. Корреляция оптических и транспортных свойств имеет место для пленок тол-

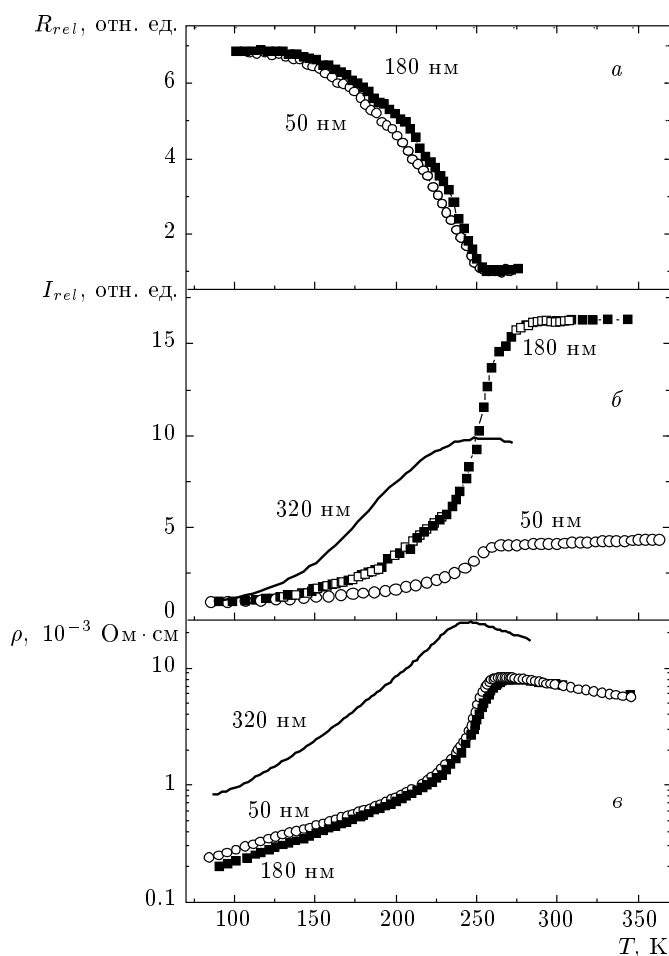


Рис. 4. а) Температурные зависимости относительного отражения $R_{rel}(T) = R(T)/R_{300\text{ К}}$ при $\lambda = 13$ мкм, б) относительного пропускания света $I_{rel}(T) = I(T)/I_{80\text{ К}}$ при 6 мкм и в) удельного электросопротивления пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

щиной 50 и 180 нм и проявляется в подобии хода кривых $I_{rel}(T)$, $R_{rel}(T)$ и $\rho(T)$, а также в близости положения температур максимумов пропускания (T_I), сопротивления (T_ρ) и минимума отражения (T_R) света (см. таблицу). Значения этих характерных температур близки к значению T_C для объемных манганитов $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ [20]. Эта корреляция свидетельствует о наличии характерного для манганитов лантана с колоссальным МС высокочастотного (оптического) отклика на переход металл-изолятор (рис. 4в) как в отражении, так и в пропускании света (рис. 4а и б). Однако эта корреляция нарушается для пленок толщиной 320 нм. Более того, электросопротивление в пленках толщиной 320 нм в несколько раз больше, чем в пленках толщиной 50 и 180 нм. Это подтверждает сделанный ранее вывод о магнитной

неоднородности пленки толщиной 320 нм подобно выводу, сделанному в работе [21].

3.6. Температурные зависимости магнитоотражения, магнитопропускания и магнито-сопротивления подобны для пленок толщиной 50 и 180 нм (рис. 5). Это проявляется в совпадении положения максимумов эффектов и их близости к T_C^* пленок (см. таблицу), в подобии формы и близости значений полуширины полос зависимостей $\Delta R/R(T)$, $\Delta I/I(T)$ и $\Delta\rho/\rho(T)$, а также в сопоставимых максимальных значениях эффектов, превышающих 10%. На момент данных исследований мы можем сделать общий вывод о том, что подобие зависимостей $\Delta R/R(T)$, $\Delta I/I(T)$ и $\Delta\rho/\rho(T)$ является характерным для манганитов с колоссальным МС, свидетельствуя о том, что магнитоотражение и магнитопропускание в манганитах являются следствием МРЭ.

Однако при анализе данных, представленных на рис. 5, возникает ряд вопросов, требующих объяснения. Во-первых, отсутствует четкая корреляция между температурными зависимостями магнитопропускания и МС для сильнонеоднородных пленок, например, толщиной 320 нм. Во-вторых, в пределах погрешности измерений нами не обнаружен высокочастотный отклик на низкотемпературное МС для тонкой пленки 50 нм ($\Delta\rho/\rho \sim 3\%$ при $T = 90$ К), тогда как при примерно такой же величине магнито-сопротивления при $T = 90$ К для пленки толщиной 320 нм магнитопропускание достигает 2.5% (рис. 5б,в). В-третьих, согласно теории, МРЭ пропорционален магнито-сопротивлению [15, 16], однако, если максимальное значение МРЭ на отражении для кристалла при $\Delta\rho/\rho \approx -14\%$ составляет $\Delta R/R \approx 4\%$ [10], т.е. МРЭ на отражении примерно в 3.5 раза меньше МС, то для пленок толщиной 50 и 180 нм максимальные значения магнитоотражения и МС примерно равны (для пленки 180 нм $\Delta\rho/\rho \approx -30\%$, а $\Delta R/R \approx 25\%$). В-четвертых, если для кристалла МРЭ на отражении положителен при всех длинах волн $\lambda > 5$ мкм, то для пленок эффект меняет знак в окрестности 12–15 мкм (см. далее).

На первый взгляд, эти впервые выявленные особенности поведения магнитоотражения и магнитопропускания в пленках манганитов полностью противоречат развитым представлениям о МРЭ. Покажем, что это не так.

Определяющая индексы рефракции n и k диэлектрическая проницаемость

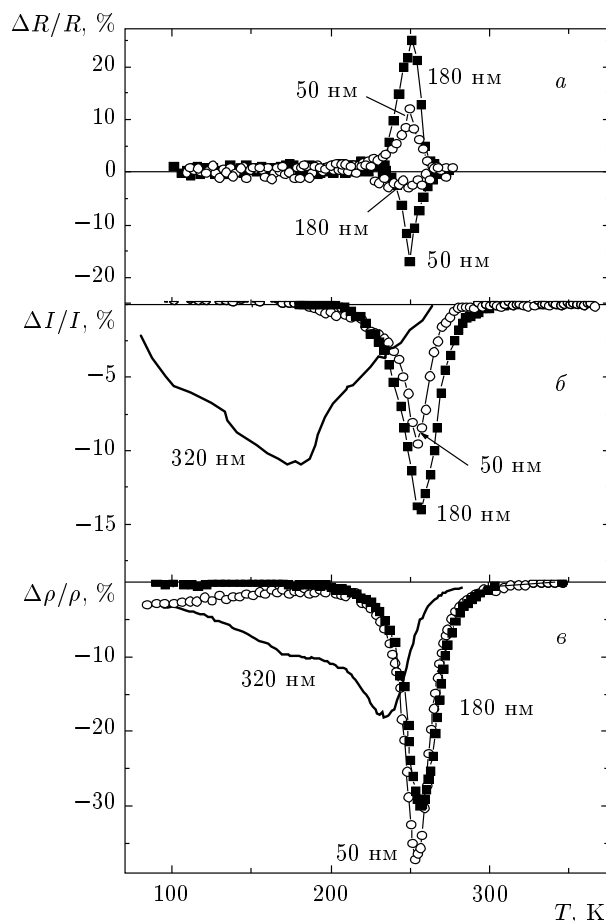


Рис. 5. а) Температурные зависимости магнитоотражения $\Delta R/R(T)$ в магнитном поле $H = 3$ кЭ, параллельном поверхности пленок, при длинах волн, для которых положительное и отрицательное магнитоотражения максимальны, б) магнитопропускания света при $\lambda = 6$ мкм, в) магнито-сопротивления в поле $H = 8$ кЭ, перпендикулярном поверхности пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

$$\varepsilon(\omega, H, T) = \varepsilon_r(\omega, H, T) - i \frac{4\pi\sigma(\omega, H, T)}{\omega} = \varepsilon' - i\varepsilon'' = (n - ik)^2 \quad (3)$$

линейно зависит от высокочастотной проводимости образца

$$\sigma(\omega, H, T) = 1/\rho(\omega, H, T),$$

изменяющейся при намагничивании образца во внешнем магнитном поле H . Второй член $4\pi\sigma(\omega, H, T)/\omega$ в выражении (3) описывает МРЭ. Первый член $\varepsilon_r(\omega, H, T)$, характеризующий вклады за счет токов смещения, межзонных переходов, взаимодействия излучения с фононами также может зависеть от магнитного поля и определять

вклады в магнитоотражение и магнитопропускание. МРЭ определяется не только величиной и температурной зависимостью МС, но и оптическими свойствами системы [15, 16]. В частности, если высокочастотная проводимость описывается законом Друде–Лоренца, то в дальней ИК-области спектра (область Хагена–Рубенса) [15]

$$\frac{\Delta R}{R} = -\frac{1}{2}(1 - R) \frac{\Delta \rho}{\rho}. \quad (4)$$

Следовательно, температурные зависимости МС и МРЭ на отражении будут аналогичны только в том случае, если оптические свойства (в рассматриваемом примере коэффициент отражения) либо слабо зависят от температуры, либо их температурная зависимость близка к температурной зависимости МС. Аналогичные соображения справедливы и для МРЭ на пропускании, причем при любом механизме МС. Манганиты в отличие от нанокompозитов или мультислоев с МРЭ характеризуются сильной температурной зависимостью оптических свойств в силу возрастающей роли свободных носителей при понижении температуры ниже температуры Кюри. В неоднородных пленках при наличии в образце двух или более магнитных фаз с разными температурами Кюри, как следует из выражения (3) и подтверждается данными рис. 3, 4, нарушается корреляция между температурными зависимостями оптических и транспортных свойств. Именно это и является причиной отсутствия прямой аналогии между МРЭ и МС для пленки толщиной 320 нм. Таким образом, совокупность данных по эффекту Керра, оптическим свойствам, магнитосопротивлению и магнитопропусканию свидетельствует о сравнительно сильной магнитной неоднородности пленок толщиной 320 нм, несмотря на достаточно высокое качество их кристаллической структуры по данным рентгеновской дифракции.

Вторая особенность, а именно, отсутствие оптического отклика на низкотемпературное МС в пленках толщиной 50 нм, но наличие магнитопропускания при низких температурах для пленок толщиной 320 нм, по-видимому, связано с различием механизмов МС в этих пленках при низких температурах. Так, для пленок толщиной 320 нм МС убывает с понижением температуры, а для пленок толщиной 50 нм МС возрастает (рис. 5). Низкотемпературный рост МС в пленках толщиной 50 нм, скорее всего, связан с туннелированием спин-поляризованных электронов между областями блочно-мозаичной структуры образцов, как это имело место в поликристаллах и пленках манганитов с

вариантной структурой (например, [25, 26]). Такой вклад в МС обусловлен деформационными напряжениями в тонкой пленке и отсутствует в более толстой пленке толщиной 180 нм. Очевидно, что частотные зависимости проводимости в выражении (3) могут значительно различаться для различных механизмов переноса заряда, и относительный вклад различных механизмов МС в МРЭ может также значительно различаться. Так, исследования МРЭ в нанокompозитах с туннельным МС показали, что при туннелировании магниторефрактивный эффект не превышает 1 % даже в сильных магнитных полях. Поэтому, по-видимому, для определения высокочастотного отклика на низкотемпературное туннельное МС в пленке толщиной 50 нм необходимы исследования при меньших температурах и в более сильных магнитных полях.

Третья особенность — нелинейная зависимость магнитоотражения света от величины МС в пленках — связана с отражением света от подложки. Соответствующее более чем трехкратное увеличение МРЭ по сравнению с данными для кристалла манганита можно назвать оптическим усилением МРЭ. Действительно, даже в случае отсутствия условий для интерференции света магнитоотражение будет формироваться как отраженным от границы воздух–пленка при первичном прохождении через нее светом, так и отраженным от подложки прошедшим через пленку и границу пленка–воздух лучом. Вклад в $\Delta R/R$ отраженного от подложки луча приводит к усилению взаимодействия света с намагниченным образцом и МРЭ. Очевидно, что оптическое усиление МРЭ нелинейно зависит от толщины пленки, так как с увеличением толщины пленки отраженный от подложки луч либо полностью, либо частично поглощается на обратном пути к границе пленка–воздух. Это объясняет, почему коэффициенты оптического усиления МРЭ для пленок толщиной 50 и 180 нм различаются незначительно. Подчеркнем также, что при наличии многократной интерференции света оптическое усиление МРЭ может достигать порядка и более, что показано теоретически в работе [28].

Наконец, наиболее удивительной особенностью является спектральная зависимость магнитоотражения, которая подробно обсуждается далее.

3.7. Полевые зависимости магнитоотражения, магнитопропускания и магнитосопротивления пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ при $T = 255$ К приведены на рис. 6. На рисунке видно, что в зависимостях $\Delta R/R(H)$, $\Delta I/I(H)$ и $\Delta \rho/\rho(H)$ отсутствуют насыщение, гистерезис и соблюдается четность

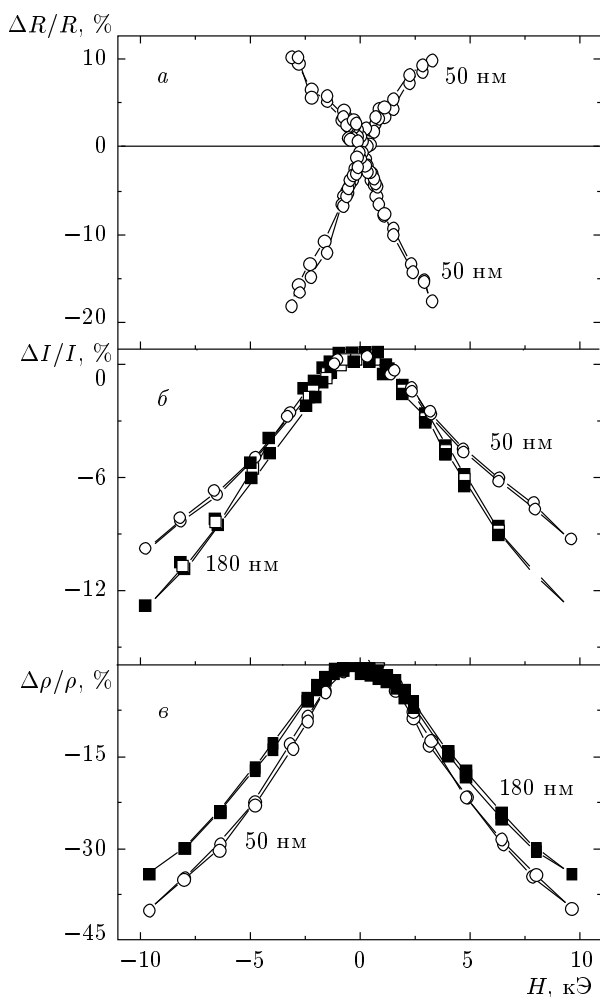


Рис. 6. а) Полевые зависимости магнитоотражения $\Delta R/R$ в магнитном поле $H = 3$ кЭ, параллельном поверхности пленок, при длинах волн, для которых положительное и отрицательное магнитоотражения максимальны, б) магнитопротекания света $\Delta I/I$ при $\lambda = 6$ мкм, в) магнитосопротивления в поле $H = 8$ кЭ, перпендикулярном поверхности пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

эффектов относительно направления магнитного поля. Такая корреляция является прямым доказательством того, что магнитоотражение и магнитопротекание в пленках связаны с МРЭ. Зависимости $\Delta R/R(H)$ представлены только для тонкой пленки толщиной 50 нм, поскольку максимальное отрицательное значение магнитоотражения для пленки толщиной 180 нм не превышает -2% в поле 3 кЭ (см. рис. 6а).

3.8. Спектральные зависимости магнитоотражения и магнитопротекания пленок, полученные при температуре максимума эффектов,

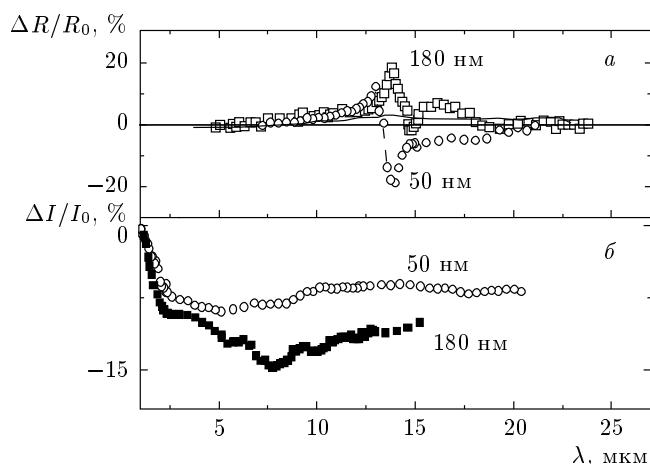


Рис. 7. а) Спектры магнитоотражения в магнитном поле $H = 3$ кЭ, параллельном поверхности пленок, б) магнитопротекания света при $H = 8$ кЭ, перпендикулярном поверхности пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, при температурах максимумов эффектов. Сплошная линия — спектр магнитоотражения кристалла $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

представлены на рис. 7. Высокая чувствительность установки позволила впервые измерить спектр магнитопротекания тонкой пленки в области длин волн $\lambda \geq 12$ мкм.

Из данных по магнитопротеканию следует, что высокочастотный отклик на МС существует во всей исследованной спектральной области и выражен более сильно, чем в магнитоотражении. Магнитопротекание $\Delta I/I$ отрицательно в широкой спектральной области от 1.5 до 21 мкм (рис. 7б) и слабо зависит от частоты при $\lambda > 2.5$ мкм. Противоположные знаки магнитопротекания и магнитоотражения соответствуют теории МРЭ. Поскольку частотная зависимость магнитопротекания достаточно монотонна при $\lambda > 2.5$ мкм, по ней трудно судить об относительном вкладе в магнитопротекание локализованных носителей типа магнитных поляронов [29] и делокализованных состояний. Наличие в спектрах поглощения полосы на краю поглощения при $\lambda \approx 1.15$ мкм (рис. 3б), связанной с возбуждением поверхностных плазмонов на границе неоднородностей, не проявляется в спектрах $\Delta I/I(\lambda)$ и $\Delta R/R(\lambda)$ (рис. 7а,б). Обнаружение в пленке толщиной всего 50 нм гигантского эффекта магнитопротекания порядка 10% демонстрирует возможность повышения оптического КПД пленок манганитов за счет уменьшения их толщины.

Эффект магнитоотражения в пленках наблюдался вблизи T_C^* в диапазоне длин волн от 5 до 20 мкм

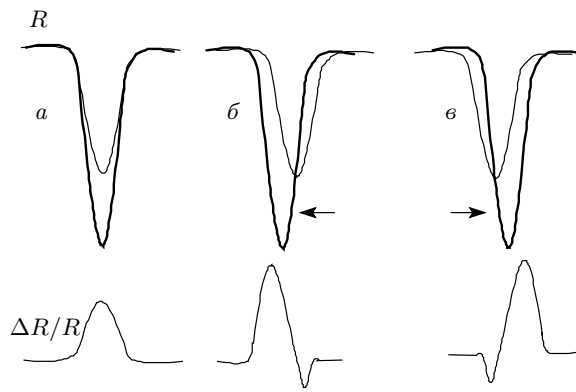


Рис. 8. Схематическое изображение спектральной зависимости коэффициента отражения R в отсутствие магнитного поля (тонкая линия) и в поле (жирная линия) и соответствующие этому изменению магнитоотражения $\Delta R/R$ в области минимума коэффициента отражения. Спектральное положение минимума в магнитном поле а) не смещается, б) смещается в область меньших длин волн, в) смещается в область больших длин волн

(рис. 7а), т. е. в том же диапазоне, что и для кристалла. Для сравнения сплошной линией на рис. 7а показан спектр $\Delta R/R(\lambda)$ для кристалла $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. Если у кристалла максимум магнитоотражения составляет примерно 4% в окрестности 13–14 мкм, то для пленок он достигает 20%. Исключив $\Delta R/R(\lambda)$ кристалла из спектра пленок, мы приблизительно выделили вклад, обусловленный пленочным состоянием $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. Анализ полученных кривых показывает, что в пленках имеется вклад «резонансного» вида (около 20%), причем разного знака на фоне слабо меняющегося положительного магнитоотражения (около 5%).

Усиление магнитоотражения в несколько раз происходит во всем диапазоне длин волн, что, как обсуждалось выше, связано с оптическим усилением МРЭ и увеличением МС в пленках по сравнению с данными для кристаллов. Усиление магнитоотражения в области смены знака имеет тот же порядок величины. Поскольку при $\lambda = 12\text{--}15$ мкм не наблюдается каких-либо особенностей в магнитопротекании, усиление не связано с каким-либо дополнительным резонансом. Для кристалла $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ максимум $\Delta R/R(\lambda)$ в окрестности 12–15 мкм связывался с двумя обстоятельствами [10]. Во-первых, существует вклад свободных носителей в $\Delta R/R(\lambda)$, который характеризуется максимумом при частоте света $\omega \sim \tau^{-1}$, где τ — время релаксации [15]. Во-вторых, в спектральной области $\lambda = 12\text{--}15$ мкм

имеет место минимум коэффициента зеркального отражения, что согласно формуле (4) значительно усиливает МРЭ на отражении. Однако в кристалле манганита смена знака $\Delta R/R(\lambda)$ не наблюдалась [10]. Для объяснения такого поведения обратимся к схеме, изображенной на рис. 8, где рассматривается поведение коэффициента отражения R и магнитоотражения $\Delta R/R(\lambda)$ в области минимума. Если при приложении магнитного поля частота, соответствующая минимуму отражения, не изменяется либо изменяется слабо, то смены знака $\Delta R/R(\lambda)$ не происходит (рис. 8а). Именно этот случай и соответствует кристаллу. Если же не только амплитуда коэффициента отражения, но и частота минимума изменяются в магнитном поле, то происходит смена знака $\Delta R/R(\lambda)$, как это показано на рис. 8б,в, причем форма сигнала зависит от направления сдвига частоты минимума отражения. Смещение минимума R при приложении магнитного поля в манганитах $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ вблизи температуры Кюри связано с тем, что для «магнитно-неоднородного» состава сопротивление низкорезистивной и высокорезистивной фаз значительно отличается друг от друга, а магнитное поле меняет соотношение объемов этих фаз. Этот эффект в кристаллах практически не заметен, а в пленках выражен значительно сильнее, так как, во-первых, у них МС в несколько раз больше, а во-вторых, имеется оптическое усиление сигнала. Таким образом, смена знака $\Delta R/R(\lambda)$ в пленках является прямым следствием сочетания одновременного наличия минимума R и большой величины $\Delta R/R$ при изменении частоты минимума коэффициента зеркального отражения в магнитном поле.

В связи с предложенным механизмом становится ясным и обнаружение сопровождающегося сменой знака магнитоотражения в узком диапазоне видимого спектра $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ в работе [7]. Как следует из приведенных выше соображений, для наблюдения магнитоотражения достаточно смещения в поле положения минимума коэффициента отражения R , даже если магнитное поле не влияет на величину R . При этом механизм возникновения минимума в спектре $R(\lambda)$ и смещения частоты минимума в магнитном поле может быть произволен. Строго говоря, магнитоотражение при этом уже не есть следствие МРЭ, но тем не менее дает возможность наблюдать эффекты магнитоотражения и магнитопротекания в более широкой области спектра, чем МРЭ, который по определению (3) имеет место в ближней ИК-области спектра.

Подчеркнем, что наличие резкого минимума коэффициента отражения резонансного вида не яв-

ляется достаточным условием для наблюдения значительного магнитоотражения. Так, минимум коэффициента отражения в исследованных пленках имеется, по крайней мере, при трех длинах волн (см. рис. 3). Смещение положения минимума при 12–15 мкм связано с тем, что в этой области спектра значителен вклад в отражение делокализованных носителей заряда и поэтому изменение сопротивления в поле приводит к смещению положения минимума коэффициента отражения. Для области межзонных переходов в окрестности $\lambda = 1$ мкм этот вклад мал, а поэтому практически отсутствует и МРЭ. Магниторефрактивный эффект, связанный с делокализованными носителями заряда, после достижения максимума в ИК-области при $\omega \sim \tau^{-1}$ уменьшается по мере увеличения длины волны (см. данные для кристалла на рис. 7). Поэтому в области минимума при $\lambda = 17$ –18 мкм, хотя смещение и имеет место, но в спектрах МРЭ оно проявляется слабее, чем при 13 мкм.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Комплексные экспериментальные исследования структурных, оптических, магнитооптических и электрических свойств эпитаксиальных пленок $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ на диэлектрических немагнитных подложках LaAlO_3 показали, что магнитоотражение и магнитопропускание в пленках манганитов могут достигать гигантских значений, сильно зависят от магнитной и зарядовой однородности пленок, их толщины, спектральной области исследований и величины магнитосопротивления. Совокупность полученных данных находит последовательное объяснение в рамках развитых представлений о МРЭ, согласно которым магнитоотражение и магнитопропускание света в ближней ИК-области спектра являются высокочастотным откликом на магнитосопротивление. При многократном прохождении света через тонкую пленку происходит оптическое усиление магниторефрактивного эффекта. Магниторефрактивный эффект на отражении достигает максимальных значений при минимальных значениях коэффициента отражения. В спектральной области минимума коэффициента отражения, если магнитное поле влияет не только на величину интенсивности отраженного сигнала, но и на частоту минимума, происходит смена знака магнитоотражения. Значительный сдвиг частоты минимума отражения в поле в пленках $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ вблизи первой фононной полосы

связан как со значительным вкладом делокализованных носителей в оптические свойства в этой области спектра, так и с механизмом колоссального магнитосопротивления в этих пленках, связанным с влиянием поля на объемное содержание низкорезистивной и высокорезистивной фаз.

Работа выполнена при финансовой поддержке ОФН РАН (грант № 09-Т-2-1013), УрО и СО РАН (грант № 09-С-2-1016), РФФИ (гранты №№ 10-02-00038, 09-02-12455-офи, 09-02-00309) и в рамках молодежного научного проекта УрО РАН (№ 8-м). Один из авторов (А. Б. Г.) благодарит за финансовую поддержку Министерство образования и Министерство науки и инновации Испании (грант SAB2009-0104).

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Inoue, A. Granovsky, O. Aktsipetrov et al., *Magnetophotonic Crystals in Magnetic Nanostructures*, ed. by B. Aktas, L. Tagirov, and F. Mikailov, Springer Series in Materials Science (2007), Vol. 94, p. 29.
2. A. K. Zvezdin and V. A. Kotov, *Modern Magneto-Optics and Magneto-Optical Materials*, Bristol and Philadelphia, IOP Publishing (1997), p. 386.
3. А. Б. Грановский, Е. А. Ганьшина, А. Н. Юрасов и др., *Радиотехн. и электрон.* **52**, 9 (2007).
4. M. Inoue, A. Khanikaev, and A. Baryshev, in *Nanoscale Magnetic Materials and Applications*, ed. by J. P. Liu, E. Fullerton, O. Gutfleisch, and D. J. Sellmyer, Springer (2009), p. 627.
5. Y. Okimoto and Y. Tokura, *J. Supercond. Incorporating Novel Magnetism* **13**, 2 (2000).
6. H. J. Lee, K. H. Kim, T. W. Noh et al., *Phys. Rev. B* **65**, 115118(6) (2002).
7. D. Hrabovsky, J. M. Caicedo, G. Herranz et al., *Phys. Rev. B* **79**, 052401(4) (2009).
8. J. H. Jung, H. J. Lee, T. W. Noh et al., *Phys. Rev. B* **62**, 481 (2000).
9. J. H. Jung, H. J. Lee, T. W. Noh et al., *Phys. Rev. B* **62**, 8634 (2000).
10. Ю. П. Сухоруков, А. В. Телегин, А. Б. Грановский и др., *ЖЭТФ* **138**, 7 (2010).
11. Yu. P. Sukhorukov, E. A. Gan'shina, B. I. Belevtsev et al., *J. Appl. Phys.* **91**, 4403 (2002).

12. E. A. Gan'shina, N. N. Loshkareva, Yu. P. Sukhorukov et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **300**, 62 (2006).
13. Ю. П. Сухоруков, Е. А. Ганьшина, Н. Н. Лошкарева и др., *ЖЭТФ* **131**, 642 (2007).
14. R. F. C. Marques, P. R. Abernethy, J. A. D. Matthew et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **272–276**, 1740 (2004).
15. А. Б. Грановский, М. В. Кузьмичев, Ж. П. Клерк, *ЖЭТФ* **116**, 1762 (1999).
16. А. Б. Грановский, И. В. Быков, Е. А. Ганьшина, *ЖЭТФ* **123**, 1256 (2003).
17. В. Г. Кравец, *Опт. и спектр.* **98**, 449 (2005).
18. А. Р. Кауль, О. Ю. Горбенко, А. А. Каменев, *Успехи химии* **73**, 932 (2004).
19. Е. А. Балькина, Е. А. Ганьшина, Г. С. Кринчик, *ЖЭТФ* **93**, 1879 (1987).
20. В. Е. Найш, *ФММ* **92**, 16 (2001).
21. Ю. П. Сухоруков, Н. Н. Лошкарева, Е. А. Ганьшина, *ЖЭТФ* **123**, 293 (2003).
22. M. I. Klinger and A. A. Samokhvalov, *Phys. Stat. Sol. B* **79**, 9 (1977).
23. Ch. Hartinger, F. Mayr, A. Loidl, and T. Koop, *Phys. Rev. B* **73**, 024408(16) (2006).
24. Ю. П. Сухоруков, Н. Н. Лошкарева, Е. А. Ганьшина и др., *ФТТ* **46**, 1203 (2004).
25. M. Ziese, *Rep. Progr. Phys.* **65**, 143 (2002).
26. O. V. Melnicov, Yu. P. Sukhorukov, A. V. Telegin et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 3753 (2006).
27. А. Б. Грановский, М. Инуе, Ж. П. Клерк, А. Н. Юрасов, *ФТТ* **46**, 484 (2004).
28. Ю. В. Борискина, С. Г. Ерохин, А. Б. Грановский и др., *ФТТ* **48**, 674 (2006).
29. Н. Н. Лошкарева, Ю. П. Сухоруков, Е. А. Ганьшина и др., *ЖЭТФ* **119**, 533 (2001).