

05.09.13

Магнитоиндуцированный нелинейно-оптический отклик пленок на основе нанослоев тяжелых и ферромагнитного металлов

© В.В. Радовская¹, Е.А. Мамонов¹, В.Б. Новиков¹, Д.А. Копылов¹, И.А. Колмычек¹,
Н.С. Гусев², И.Ю. Пашенькин², Т.В. Мурзина¹

¹ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
Москва, Россия

² Институт физики микроструктур РАН,
Нижний Новгород, Россия

E-mail: radovskaia.vv16@physics.msu.ru

Поступила в Редакцию 9 апреля 2021 г.

В окончательной редакции 9 апреля 2021 г.

Принята к публикации 19 апреля 2021 г.

Экспериментально исследованы магнитоиндуцированные эффекты при генерации оптической второй гармоники в трехслойных пленках состава W/Co/Pt с разной толщиной слоя кобальта (2–10 nm) в присутствии меридионального магнитного поля. Обнаружено наличие нечетного по намагниченности интенсивностного эффекта в *p*-поляризованной второй гармонике и выявлено возрастание соответствующего магнитного контраста интенсивности второй гармоники с увеличением толщины слоя кобальта от 2 до 10 nm. Феноменологическое описание наблюдавшихся эффектов выполнено в рамках рассмотрения объемной нелинейной поляризации на частоте второй гармоники, пропорциональной градиенту намагниченности в направлении нормали к структуре, а также интерфейсного вклада, пропорционального квадрату намагниченности пленок.

Ключевые слова: магнитоиндуцированная вторая гармоника, интерфейс тяжелый/ферромагнитный металл, тонкие пленки, нелинейная восприимчивость.

DOI: 10.21883/FTT.2021.09.51251.07H

1. Введение

Магнитные наноструктуры, содержащие границу раздела ферромагнитного и тяжелых металлов, представляют особый интерес ввиду наличия у них специфических свойств. Ранее в подобных структурах были обнаружены такие эффекты как перпендикулярная магнитная анизотропия [1,2], формирование киральных состояний намагниченности [3], в т. ч. скирмионов [4], представляющих как фундаментальный, так и практический интерес. С другой стороны, в такого рода структурах ввиду их уникальных магнитных свойств могут наблюдаться и новые оптические эффекты. В недавних экспериментальных работах были исследованы магнитоиндуцированные эффекты при генерации оптической второй гармоники (ВГ) в двух- и трехслойных пленках, образованных нанослоями кобальта и немагнитных металлов (Pt, Ta). Использование метода генерации ВГ было обусловлено его селективной чувствительностью к свойствам границ раздела centrosymmetrichных сред, к числу которых относятся, в том числе такие металлы, как кобальт, платина и вольфрам [5]. При этом был обнаружен нечетный интенсивностный магнитооптический эффект на частоте ВГ, запрещенный по соображениям симметрии для границ раздела однородно намагниченных сред („запрещенный“ эффект) [6]; наибольшее значение этого эффекта в двухслойных пленках на основе кобальта достигалось в структуре на основе Co/Pt [7,8]. Более

того, в случае несимметричной трехслойной структуры Pt/Co/W данный эффект усиливался, относительная модуляция интенсивности ВГ при смене направления меридионального магнитного поля превышала 10% [9]. В продолжение этих исследований представляет несомненный интерес изучение данного эффекта для случая других видов магнитных наноструктур на основе ферромагнитного и тяжелого металлов.

Целью настоящей работы являлось экспериментальное изучение особенностей генерации магнитоиндуцированной второй гармоники (МВГ) в трехслойных пленках со структурой W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта $x = 2–10$ nm в сравнении с аналогичными пленками с обратной последовательностью слоев и выявление зависимостей „запрещенного“ эффекта при генерации ВГ от условий эксперимента и толщины слоя ферромагнетика (кобальта) в структуре.

2. Методика эксперимента

В работе исследовались трехслойные металлические пленки состава Pt/Co/W и W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта 2, 3, 4 и 10 nm на подложках аморфного стекла (порядок слоев слева направо в обозначениях структур соответствует направлению от подложки). Данные структуры были изготовлены методом магнетронного напыления в атмосфере аргона при давлении

нии $4 \cdot 10^{-3}$ Torr, предварительная откачка в камере осуществлялась до 10^{-5} Torr. Рост пленок происходил при комнатной температуре со скоростью 0.125 nm/s для Co, 0.25 nm/s для Pt и 0.3 nm/s для W, что позволяло контролировать толщину с хорошей точностью. Характерные скорости напыления были определены путем предварительного измерения параметров роста тестовых образцов методом малоугловой рентгеновской дифрактометрии.

При проведении нелинейно-оптических экспериментов в качестве накачки использовалось *p*-поляризованное излучение импульсного фемтосекундного Ti:Sa-лазера с диодной накачкой (длина волны ~ 800 nm, длительность импульса ~ 20 fs, средняя мощность излучения 50 mW, частота следования импульсов 80 MHz). Излучение накачки фокусировалось на поверхности образца в пятно диаметром около $30 \mu\text{m}$, угол падения составлял от 0 до 40° . Исследуемая структура была расположена между полюсами электромагнита, создававшего магнитное поле с напряженностью до 1.5 kOe, ориентированное параллельно плоскости падения и либо перпендикулярно лучу накачки, либо параллельно поверхности магнитных пленок. Согласно анализу симметрии нелинейного оптического отклика, в обоих случаях в однородных магнитных структурах должен наблюдаться магнитоиндуцированный поворот плоскости поляризации. С помощью анализатора (призма Глана–Тейлора) из прошедшего излучения на частоте ВГ выделялась *p*-поляризованная компонента (т.н. „запрещенная“ геометрия, для которой не должно наблюдаться магнитоиндуцированного изменения интенсивности ВГ), либо смешанная, т.н. *mixed*-компонента (ось анализатора повернута под углом 45° к плоскости поляризации накачки; т.н. „разрешенная“ геометрия), в этом случае фактически измеряется магнитоиндуцированный поворот плоскости поляризации излучения ВГ; соответствующие схемы эксперимента приведены ниже в виде вставок на рисунках. Прошедшее через структуру излучение на частоте ВГ выделялось системой фильтров и регистрировалось с помощью фотоэлектронного умножителя, работавшего в режиме счета фотонов.

3. Экспериментальные результаты

На рис. 1 приведены зависимости интенсивности прошедшей ВГ от напряженности магнитного поля, прикладываемого в плоскости образца, измеренные в трехслойных пленках с одинаковым составом и разной последовательностью слоев: Pt/Co/W и W/Co/Pt. Угол падения излучения накачки θ составлял 30° , ориентация образца и магнитного поля схематически изображены на рис. 1, *a*. На рис. 1, *b* приведены зависимости интенсивности ВГ от магнитного поля для „разрешенной“ геометрии, т.е. поворот плоскости поляризации волны ВГ как функция приложенного магнитного поля. Видно, что

область перемагничивания пленки W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта 3 nm (~ 150 Oe) в случае „разрешенной“ геометрии шире, чем у Pt/Co/W с такой же толщиной

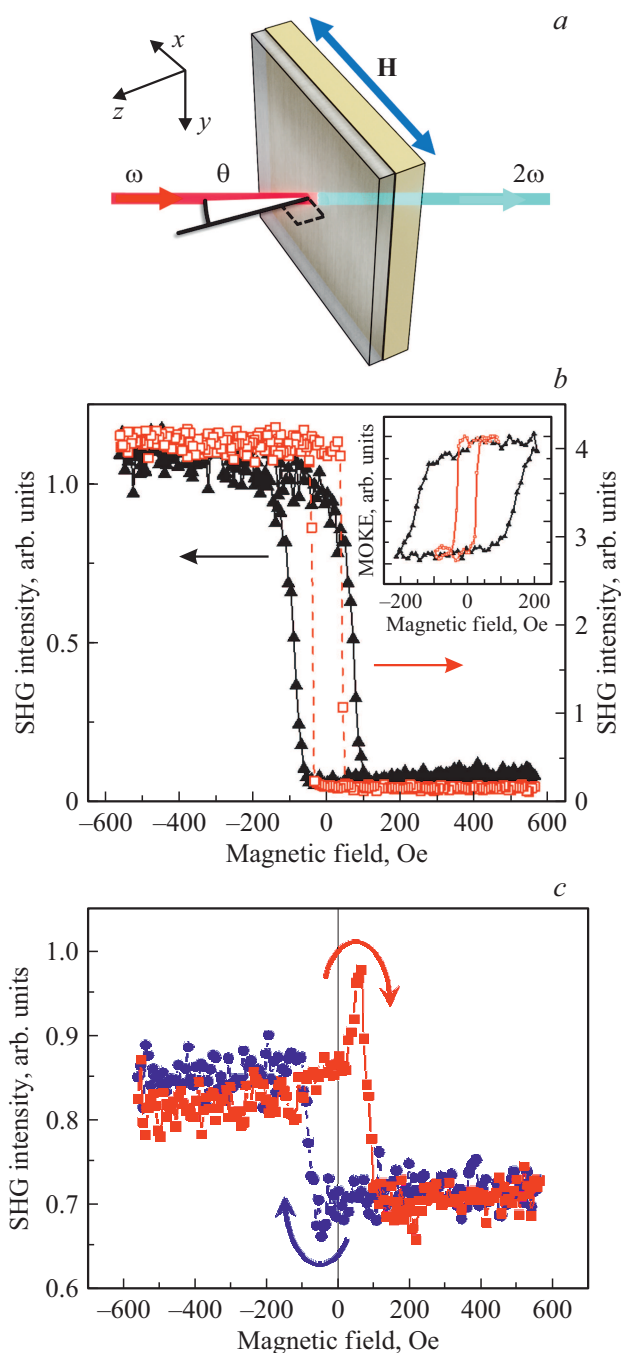


Рис. 1. (a) — Схема эксперимента, θ — угол падения излучения накачки. (b, c) — Зависимость интенсивности МВГ от магнитного поля: (b) для Pt/Co/W (квадраты) и W/Co/Pt (треугольники) с толщиной слоя кобальта 3 nm, „разрешенная“ геометрия; (c) — W/Co/Pt (треугольники), „запрещенная“ геометрия; стрелками указано направление прохода. На вставке на части (b) линейный магнитооптический эффект Керра (МОКЕ) для структур Pt/Co/W и W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта 3 nm, обозначения те же, что на основной части рисунка.

слоя кобальта (~ 40 Ое), что указывает на различие магнитных свойств пленки кобальта, в зависимости от того, напыляется она на вольфрам или на платину. Аналогичные различия видны в результатах измерений линейного магнитооптического эффекта Керра (вставка на рис. 1, *b*), а также для всех исследованных структур с разной толщиной слоя Co. Если учесть, что для данной геометрии эксперимента, являющейся аналогом меридионального эффекта Керра при отражении света от магнитных сред, интенсивность второй гармоники можно определить как $I_{2\omega}(H) = |\mathbf{P}^{odd}(H) + \mathbf{P}^{cr}|^2$, где $\mathbf{P}^{odd}$ и $\mathbf{P}^{cr}$ — линейная (нечетная по намагниченности) и кристаллографическая составляющие нелинейной поляризации на частоте второй гармоники, то из представленных зависимостей можно оценить отношение по модулю этих компонент: получено, что для W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта 3 nm $|\mathbf{P}^{odd}|/|\mathbf{P}^{cr}| \approx 0.56$, а для Pt/Co/W с такой же толщиной слоя кобальта $|\mathbf{P}^{odd}|/|\mathbf{P}^{cr}| \approx 0.65$. Следует отметить, что такие относительно большие значения магнитной компоненты нелинейной поляризации возникают в несимметричной по структуре трехслойной пленке, когда слой кобальта расположен между слоями разных металлов; для бислойных пленок эти значения существенно меньше.

На рис. 1, *c* приведен гистерезис интенсивности ВГ для структуры W(3)Co(3)Pt(3) в „запрещенной“ геометрии (для структур с другими толщинами зависимость имеет аналогичный вид). Во-первых, наблюдается изменение $I_{2\omega}$ вблизи нулевого значения магнитного поля, что, как рассматривалось в [7,8], может быть связано с перемагничиванием пленки путем разворота средней намагниченности в плоскости образца. При этом в данном диапазоне полей намагниченность проходит через экваториальное направление, что приводит к магнитоиндуцированному изменению интенсивности ВГ (аналог экваториального эффекта Керра, но в проходящем излучении); о возможности наблюдения такого эффекта в тонких пленках в асимметричном окружении упоминалось в [10]. Вторая особенность такого рода зависимостей состоит в наличии магнитного контраста интенсивности ВГ, вплоть до насыщающих полей около 600 Ое; магнитный контраст интенсивности ВГ определяется как $\rho_{2\omega} = (I_{2\omega}(+H) - I_{2\omega}(-H)) / (I_{2\omega}(+H) + I_{2\omega}(-H))$, где $I_{2\omega}(+H)$ и $I_{2\omega}(-H)$ — интенсивности ВГ для магнитных полей разного знака. Отличный от нуля магнитный контраст указывает на наличие нечетного по намагниченности эффекта в излучении на частоте ВГ. Как уже упоминалось во введении, контраст интенсивности ВГ не должен наблюдаться для поверхностей однородно намагниченных сред [11] при учете линейных и квадратичных по намагниченности компонент нелинейной поляризации.

На рис. 2, *a, b* представлены зависимости $\rho_{2\omega}(\theta)$ и $I_{2\omega}^{mean}(\theta)$ магнитного контраста и средней интенсивности ВГ, соответственно, от угла падения излучения на пленки W(3)Co(*x*)Pt(3) с разной толщиной слоя кобальта ($x = 2, 3, 4, 10$ nm); средняя ин-

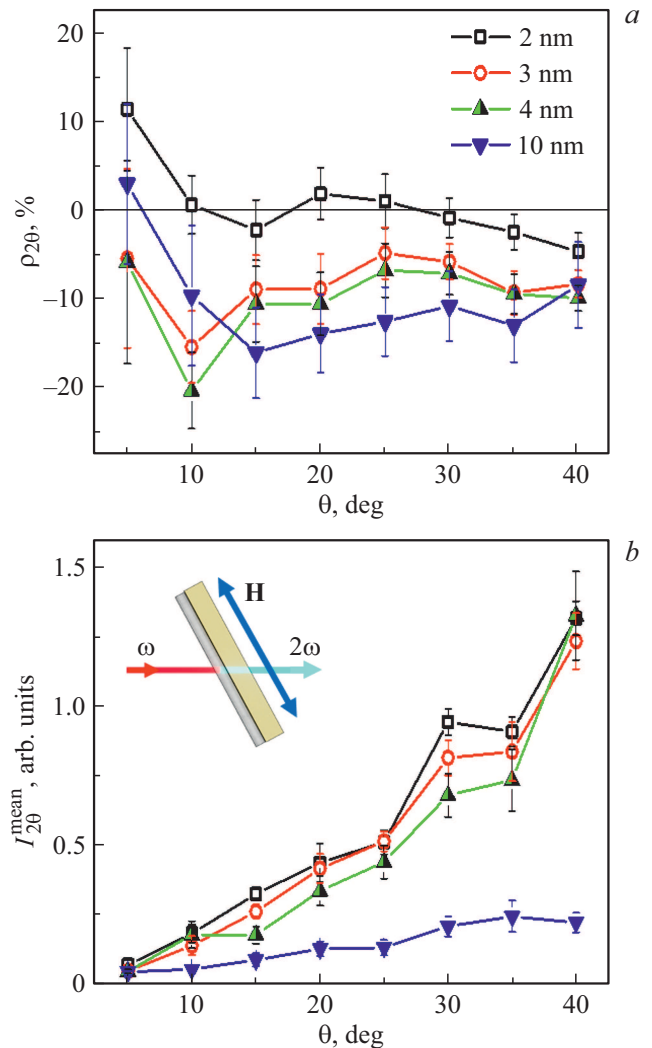


Рис. 2. Зависимость от угла падения света: (а) магнитного контраста $\rho_{2\omega}(\theta)$, (b) средней интенсивности ВГ $I_{2\omega}^{mean}(\theta)$ для структур W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта 2 nm — квадраты, 3 nm — кружки, 4 nm — треугольники, 10 nm — перевернутые треугольники.

тенсивность ВГ определялась как $I_{2\omega}^{mean} = 0.5(I_{2\omega}(+H) + I_{2\omega}(-H))$, где измерялась интенсивность p -поляризованной ВГ. Магнитное поле прикладывалось в плоскости образца параллельно плоскости падения (меридиональная геометрия). Видно, что контраст интенсивности ВГ для „запрещенного“ эффекта минимален при малых углах падения θ , а при значениях θ более $10-15^\circ$ принимает приблизительно постоянное значение. При этом можно заметить, что $\rho_{2\omega}$ растет при увеличении толщины слоя кобальта x . Средняя интенсивность p -поляризованной ВГ, определяемая кристаллографической (немагнитной) компонентой второй гармоники $I_{2\omega}^{mean}(\theta)$, монотонно растет с увеличением угла падения зондирующего излучения, что отражает преимущественную роль z -компоненты нелинейной поляризации в данном случае.

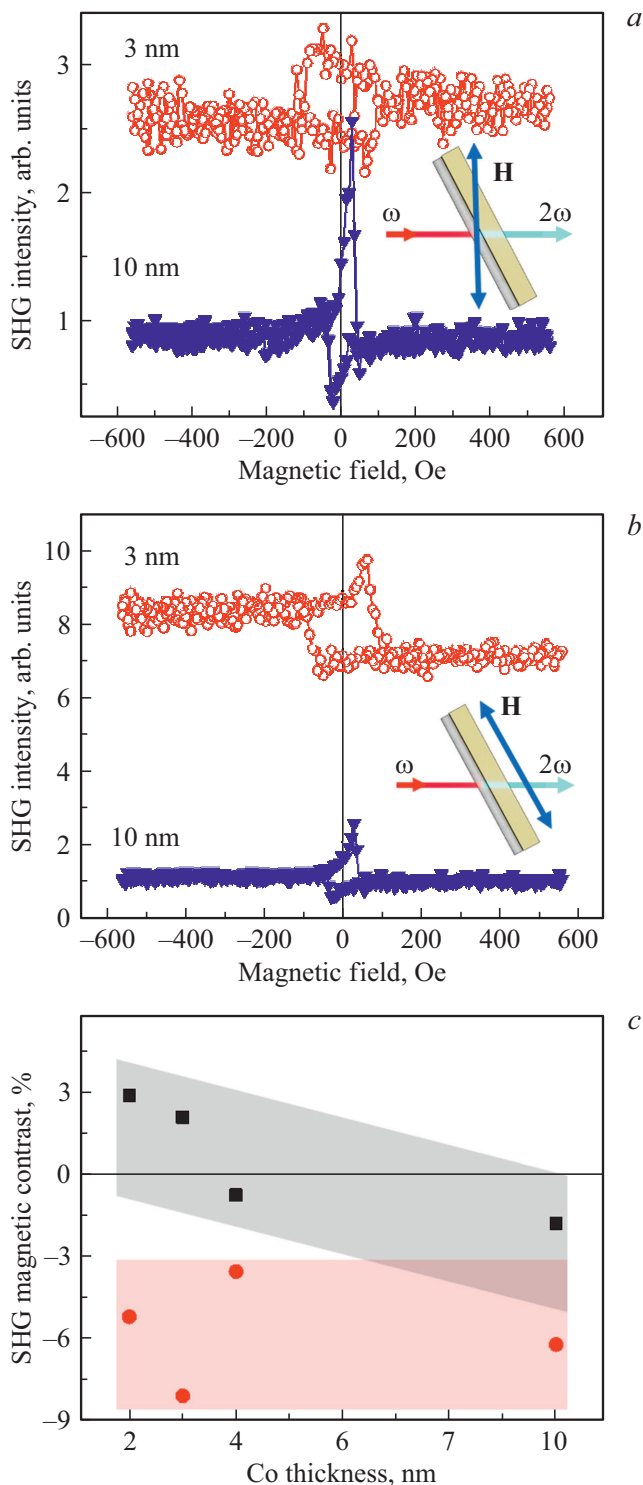


Рис. 3. (a, b) Зависимости интенсивности ВГ в геометрии „запрещенного“ эффекта для структур W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта 3 nm (кружки) и 10 nm (перевернутые треугольники) при различных конфигурациях магнитного поля: магнитное поле лежит в плоскости падения излучения накачки и (a) перпендикулярно волновому вектору, (b) параллельно плоскости образца. (c) Зависимости магнитного контраста интенсивности ВГ от толщины слоя кобальта $\rho_{2\omega}(x)$ при конфигурации магнитного поля как на панели a (квадраты) и b (кружки).

На рис. 3, a, b представлены зависимости интенсивности ВГ от магнитного поля для структур W/Co/Pt с толщиной слоя кобальта 2, 3, 4 и 10 nm при угле падения излучения накачки $\theta = 30^\circ$, но при разных способах приложения магнитного поля: ориентированного в обоих случаях в плоскости падения излучения накачки и перпендикулярного лучу накачки (рис. 3, a), либо параллельного поверхности пленок (рис. 3, b). Зависимости магнитного контраста интенсивности ВГ от толщины слоя кобальта $\rho_{2\omega}(x)$ для обеих схем приложения магнитного поля приведены на рис. 3, c. Видно, что при конфигурации a (магнитное поле перпендикулярно волновому вектору) среднее значение магнитного контраста меньше по модулю, чем при конфигурации b (магнитное поле лежит в плоскости образца), а также противоположно ему по знаку.

4. Обсуждение результатов

Для описания полученных данных воспользуемся феноменологическим рассмотрением, предложенным в работе [9], в которой было показано, что источником „запрещенного“ эффекта могут являться т.н. градиентные магнитные компоненты нелинейной поляризации вида $P_i^\nabla \propto \chi_{ijkLmN}^{(4)} E_j E_k M_L \nabla_m M_N$, разрешенные для объема centrosymmetric сред и обладающие нечетной зависимостью от намагниченности [12]. Здесь $\chi_{ijkLmN}^{(4)}$ — компоненты в разложении магнитной восприимчивости

$$\chi_{ijk}(\mathbf{M}) = \chi_{ijk}^{(0)} + \chi_{ijkL}^{(1)} M_L + \chi_{ijkLM}^{(2)} M_L M_M + \chi_{ijkLMN}^{(3)} \nabla_L M_M + \chi_{ijkLMN}^{(4)} M_L \nabla_m M_N + \chi_{ijkLMnK}^{(5)} \nabla_L M_M \nabla_n M_K + \dots,$$

$\mathbf{M}$ — намагниченность, $\mathbf{E}$ — напряженность электрического поля световой волны. Аналогичный эффект наблюдался ранее для пленок на основе кобальта, платины и тантала [7,8]. В предположении, что на интерфейсах образуется макроскопическая z-компонента намагниченности, для случая приложенного вдоль оси x магнитного поля были получены нечетные по намагниченности компоненты: $\chi_{xxxZzX}^{(4)}$, $\chi_{xzzZzX}^{(4)}$, $\chi_{zzxZzX}^{(4)} = \chi_{zzxZzX}^{(4)}$, $\chi_{xxxXzZ}^{(4)}$, $\chi_{xzzXzZ}^{(4)}$, $\chi_{zzxXzZ}^{(4)} = \chi_{zzxXzZ}^{(4)}$. Кроме того, на интерфейсе действуют нечетные по намагниченности вклады вида $P_i^{MM} \propto M_L M_M$ (квадратичные по намагниченности и в объеме centrosymmetric среды, вследствие принципа Неймана, равные нулю): определяемые компонентами $\chi_{xxxXZ}^{(3)}$, $\chi_{xzzXZ}^{(3)}$, $\chi_{zzxXZ}^{(3)} = \chi_{zzxXZ}^{(3)}$. Тогда в эксперименте регистрируется полная интенсивность p-поляризованной составляющей ВГ $I_{2\omega} \propto |\mathbf{P}^{cr} + \mathbf{P}^\nabla + \mathbf{P}^{MM}|^2$, где $\mathbf{P}^\nabla + \mathbf{P}^{MM}$ отвечают за нечетную по намагниченности модуляцию ВГ.

В случае, когда магнитное поле приложено перпендикулярно волновому вектору, существует z-компонента внешнего поля, которая модулирует амплитуду и, возможно, направление z-компоненты намагниченности образца M_z , что, во-первых, изменяет вклад от упомянутых

ранее компонент, а во-вторых, наводит дополнительный, зависящий от внешнего магнитного поля вклад от градиентных компонент $\chi_{zxxzz}^{(4)}$, $\chi_{zzzz}^{(4)}$, $\chi_{xzzzz}^{(4)} = \chi_{xxzz}^{(4)}$, а также от квадратичных по намагниченности компонент $\chi_{zxxzz}^{(3)}$, $\chi_{zzzz}^{(3)}$, $\chi_{xzzzz}^{(3)} = \chi_{xxzz}^{(3)}$. Это объясняет различие магнитного контраста по модулю и знаку на рис. 3.

Как уже было сказано ранее, при углах падения излучения накачки θ более $10\text{--}15^\circ$ наблюдается увеличение абсолютного значения магнитного контраста $\rho_{2\omega}$ при увеличении толщины слоя кобальта. Это может быть связано с ростом вклада от компонент вида $\chi_{ijklmn}^{(4)}$, работающих в объеме пленок. Уменьшение же средней интенсивности $I_{2\omega}^{mean}$ может происходить из-за того, что при увеличении толщины Co возрастает поглощение образца, в т. ч. и на частоте ВГ.

5. Заключение

Таким образом, в работе исследована генерация оптической второй гармоники в трехслойных пленках состава W/Co/Pt с разной толщиной слоя кобальта ($2\text{--}10\text{ nm}$) в геометрии на пропускание при наложении статического меридионального магнитного поля. Обнаружено наличие „запрещенного“ (для структур с однородной намагниченностью) нечетного по намагниченности эффекта в интенсивности p -поляризованной ВГ, который с точки зрения феноменологии может быть описан в терминах объемной компоненты нелинейной поляризации на частоте ВГ, пропорциональной градиенту намагниченности в направлении нормали в пленке, и интерфейсной компоненты поляризации, пропорциональной квадрату намагниченности.

Получена зависимость „запрещенного“ эффекта во ВГ от угла падения излучения накачки на пленки W/Co/Pt с разной толщиной слоя кобальта. Показано, что при $\theta > 10\text{--}15^\circ$ величина „запрещенного“ эффекта имеет приблизительно постоянное значение и максимальна для структур с наибольшей толщиной слоя кобальта. Обнаружено, что величина нечетного интенсивностного эффекта в отклике ВГ для пленок W/Co/Pt больше в случае, когда магнитное поле приложено в плоскости падения и в плоскости пленки; что может быть объяснено участием разных наборов компонент нелинейной восприимчивости.

Благодарности

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, грант № 19-72-20103, с использованием оборудования ЦКП „Физика и технология микро- и наноструктур“ ИФМ РАН. В.В.Р. благодарит Фонд развития теоретической физики и математики „Базис“ (грант № 20-2-9-23-1).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] P.F. Carcia, A.D. Meinhaldt, A. Suna. Appl. Phys. Lett. **47**, 178 (1985).
- [2] F.J.A. den Broeder, D. Kuiper, A.P. van de Mosselaer, W. Hoving. Phys. Rev. Lett. **60**, 2769 (1988).
- [3] W. Legrand, J.-Y. Chauleau, D. Maccariello, N. Reyren, S. Collin, K. Bouzehouane, N. Jaouen, V. Cros, A. Fert. Sci. Adv. **4**, eaat0415 (2018).
- [4] W. Jiang, Sh. Zhang, X. Wang, Ch. Phatak, Q. Wang, W. Zhang, M.B. Jungfleisch, J.E. Pearson, Y. Liu, J. Zang, X. Cheng, A. Petford-Long, A. Hoffmann, S.G.E. te Velthuis. Phys. Rev. B **99**, 104402 (2019).
- [5] R.W. Boyd. Nonlinear optics. 3rd ed. Elsevier, USA (2008). 613 c.
- [6] I.A. Kolmychek, V.V. Radovskaya, E.A. Mamonov, A.I. Maydykovskiy, A.V. Sadovnikov, S.E. Sheshukova, S.A. Nikitov, M.P. Temiryazeva, N.S. Gusev, A.A. Fraerman, T.V. Murzina. J. Magn. Magn. Mater. **528**, 167780 (2021).
- [7] Т.В. Мурзина, И.А. Колмычек, Н.С. Гусев, А.И. Майдыковский. Письма в ЖЭТФ **111**, 370 (2020).
- [8] И.А. Колмычек, В.В. Радовская, К.А. Лазарева, Е.Е. Шалыгина, Н.С. Гусев, А.И. Майдыковский, Т.В. Мурзина. ЖЭТФ **157**, 661 (2020).
- [9] T.V. Murzina, V.V. Radovskaya, I.Yu. Pashen'kin, N.S. Gusev, A.I. Maydykovskiy, E.A. Mamonov. Opt. Express **29**, 2106 (2021).
- [10] А.К. Звездин, В.А. Котов. Магнитооптика тонких пленок. Наука, М. (1988). 192 c.
- [11] Ru-Pin Pan, H.D. Wei, Y.R. Shen. Phys. Rev. B **39**, 1229 (1989).
- [12] A.V. Petukhov, I.L. Lyubchanskii, Th. Rasing. Phys. Rev. B **56**, 2680 (1997).

Редактор Е.Ю. Флегонтова