

05.09.13

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

© В.В. Радовская<sup>1</sup>, Е.А. Мамонов<sup>1</sup>, В.Б. Новиков<sup>1</sup>, Д.А. Копылов<sup>1</sup>, И.А. Колмычек<sup>1</sup>,  
Н.С. Гусев<sup>2</sup>, И.Ю. Пашенькин<sup>2</sup>, Т.В. Мурзина<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
Москва, Россия

<sup>2</sup> 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

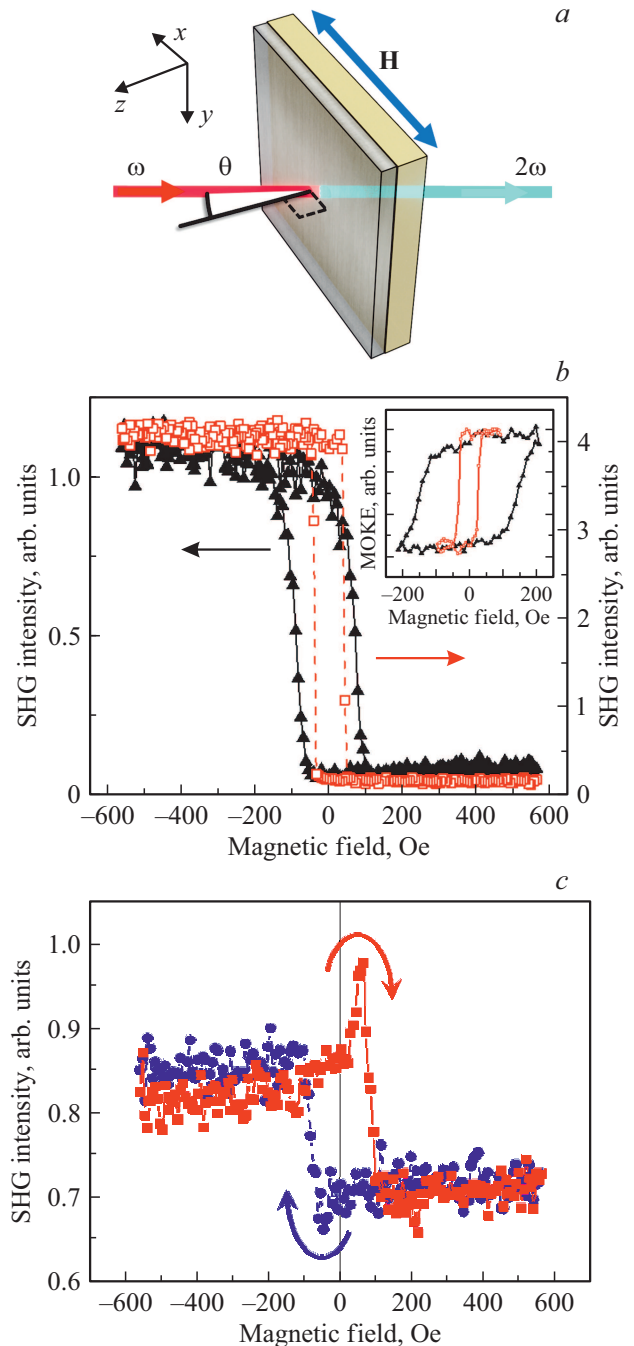
нии  $4 \cdot 10^{-3}$  Torr, предварительная откачка в камере осуществлялась до  $10^{-5}$  Torr. Рост пленок происходил при комнатной температуре со скоростью 0.125 nm/s для Co, 0.25 nm/s для Pt и 0.3 nm/s для W, что позволяло контролировать толщину с хорошей точностью. Характерные скорости напыления 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  $\sim 800$  nm, длительность импульса  $\sim 20$  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  $40^\circ$ . 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  $45^\circ$  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  $\theta$  составлял  $30^\circ$ , 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 ( $\sim 150$  Oe) в случае „разрешенной“ геометрии шире, чем у Pt/Co/W с такой же толщиной

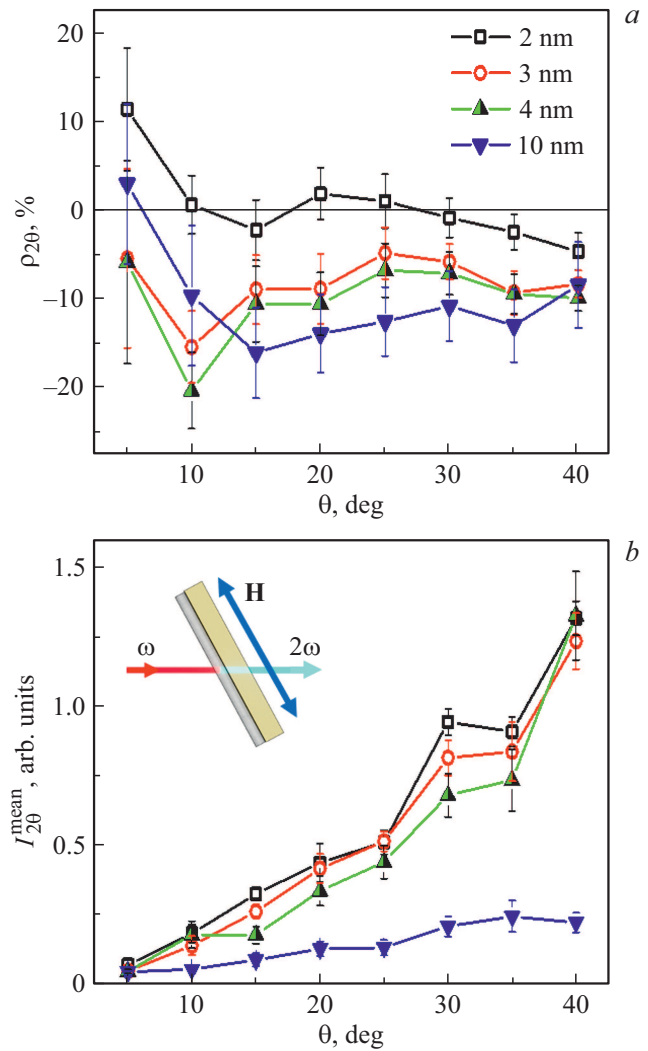


**Рис. 1.** (a) — Схема эксперимента,  $\theta$  — угол падения излучения накачки. (b, c) — Зависимость интенсивности МВГ от магнитного поля: (b) для Pt/Co/W (квадраты) и W/Co/Pt (треугольники) с толщиной слоя кобальта 3 nm, „разрешенная“ геометрия; (c) — W/Co/Pt (треугольники), „запрещенная“ геометрия; 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 ( $\sim 40$  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.

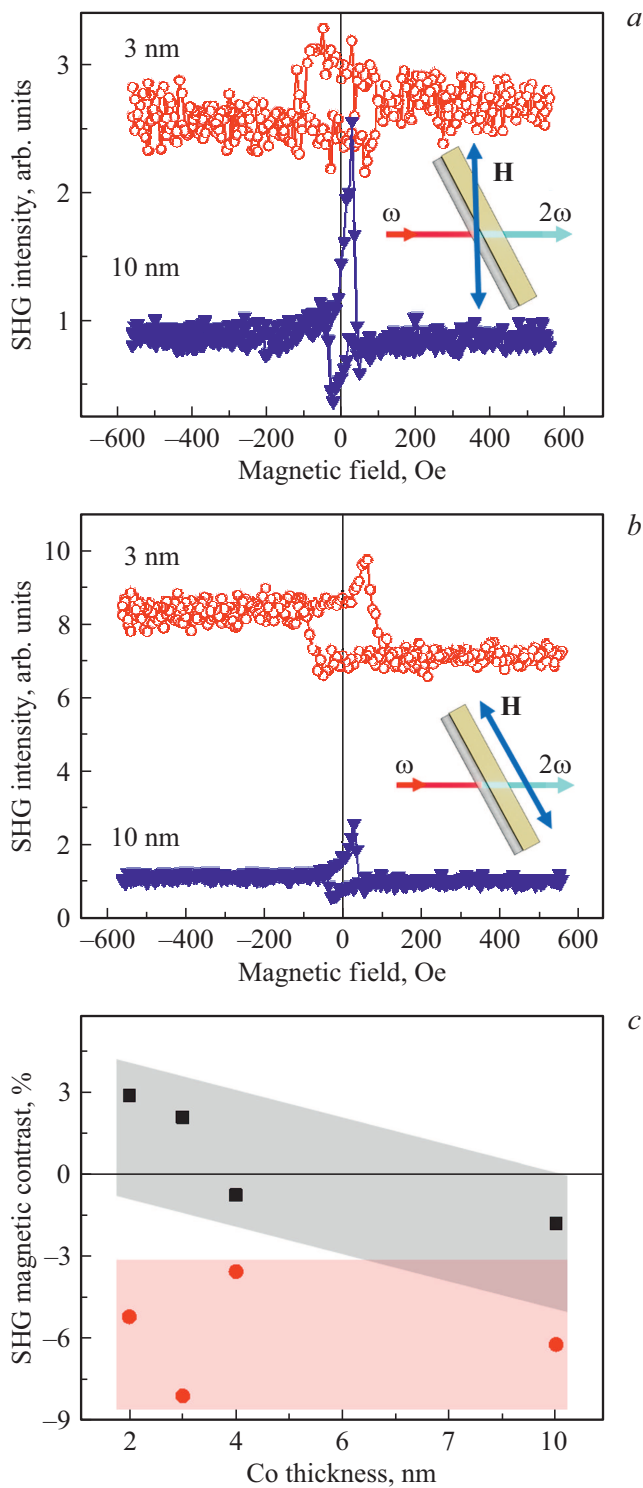
На рис. 1, *c* приведен гистерезис интенсивности ВГ для структуры W(3)Co(3)Pt(3) в „запрещенной“ геометрии (для структур с другими толщинами зависимость имеет аналогичный вид). Во-первых, наблюдается изменение  $I_{2\omega}$  вблизи нулевого значения магнитного поля, что, как рассматривалось в [7,8], 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 накачки 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  $\rho_{2\omega}(\theta)$ , (б) 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  $\theta$ , а при значениях  $\theta$  более 10–15° 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

$$\chi_{ijk}(\mathbf{M}) = \chi_{ijk}^{(0)} + \chi_{ijkL}^{(1)} M_L + \chi_{ijkLM}^{(2)} M_L M_M + \chi_{ijkLM}^{(3)} \nabla_l M_M + \chi_{ijkLmN}^{(4)} M_L \nabla_m M_N + \chi_{ijkLmNk}^{(5)} \nabla_l M_M \nabla_n M_k + \dots,$$

$\mathbf{M}$  — 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:  $\chi_{xxxZzX}^{(4)}$ ,  $\chi_{xzzZzX}^{(4)}$ ,  $\chi_{zxxZzX}^{(4)} = \chi_{zxxZzX}^{(4)}$ ,  $\chi_{xxxXzZ}^{(4)}$ ,  $\chi_{xzzXzZ}^{(4)} = \chi_{zxxXzZ}^{(4)}$ . 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  $\chi_{xxxXzZ}^{(3)}$ ,  $\chi_{xzzXzZ}^{(3)}$ ,  $\chi_{zxxXzZ}^{(3)} = \chi_{zxxXzZ}^{(3)}$ . 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  $\chi_{zxxZzZ}^{(4)}$ ,  $\chi_{zzzZzZ}^{(4)}$ ,  $\chi_{xzxZzZ}^{(4)} = \chi_{xxzZzZ}^{(4)}$ , а также от квадратичных по намагниченности компонент  $\chi_{zxxZZ}^{(3)}$ ,  $\chi_{zzzZZ}^{(3)}$ ,  $\chi_{xzxZZ}^{(3)} = \chi_{xxzZZ}^{(3)}$ . Это объясняет различие магнитного контраста по модулю и знаку на рис. 3.

Как уже было сказано ранее, при углах падения излучения накачки  $\theta$  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. Chaudreau, 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 с.
- [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. Шальгина, 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 с.
- [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