

Гигантские магнитоиндуцированные эффекты при генерации второй гармоники в планарной анизотропной структуре Ta/Co/Pt

Т. В. Мурзина⁺¹⁾, И. А. Колмычек⁺, Н. С. Гусев^{*}, А. И. Майдыковский⁺

⁺ Физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^{*} Институт физики микроструктур РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 26 февраля 2020 г.

После переработки 26 февраля 2020 г.

Принята к публикации 27 февраля 2020 г.

Исследованы магнитоиндуцированные эффекты при генерации второй гармоники в тонкой несимметричной трехслойной пленке Ta/Co/Pt с плоскостной магнитной анизотропией. Показано, что для геометрии меридионального магнитооптического эффекта Керра поворот плоскости поляризации волны второй гармоники достигает 37° , что соответствует относительной величине магнитоиндуцированной компоненты поля второй гармоники около 30% и значительно превышает величину аналогичного эффекта для бислойных структур Co/Pt. Показано, что перемагничивание Ta/Co/Pt структуры происходит за счет разворота ее намагниченности в плоскости пленки, причем его направление определяется ориентацией оси легкого намагничивания структуры относительно приложенного поля. Экспериментально в схеме меридионального эффекта Керра обнаружен нечетный по намагниченности вклад в интенсивность второй гармоники, запрещенный по симметрии для поверхностей однородно намагниченных структур.

DOI: 10.31857/S0370274X20060065

Интерес к свойствам магнитных наноструктур и наблюдаемым в них эффектам остается устойчиво высоким в течение последних десятилетий [1–3]. Отдельным направлением исследований является магнетизм границ раздела сред, для которых был обнаружен целый ряд специфических эффектов, принципиально связанных с наличием интерфейсов [4–6]. Это относится также к магнитоиндуцированным нелинейно-оптическим эффектам, величина которых, как было показано в целом ряде работ, значительно, на один-два порядка по величине, может превышать линейные магнитооптические аналоги [7, 8]. Более того, в случае centrosymmetric магнитных сред источники квадратичных нелинейно-оптических эффектов, и в первую очередь генерации второй гармоники (ВГ), локализованы на границах раздела сред, где инверсная симметрия нарушена [9]. Сочетание этих двух факторов определяет высокую чувствительность метода генерации ВГ к свойствам интерфейсов и перспективность его использования для диагностики магнитных тонких пленок и наноструктур [10–12].

Ранее, при изучении генерации ВГ в бислойных пленках на основе кобальта и тяжелого металла, платины или тантала, нами было показано, что такие структуры демонстрируют не только обычный маг-

нитный нелинейно-оптический эффект на частоте ВГ, но также и новый линейный по намагниченности эффект, проявляющийся как модуляция интенсивности p -поляризованной компоненты ВГ приложенным меридиональным магнитным полем [13]. Было высказано предположение, что механизмом эффекта могут быть особенности распределения намагниченности, связанные с интерфейсным взаимодействием Дзялошинского–Мория [14, 15]. В развитие данной задачи мы усложнили экспериментальную структуру за счет введения второй магнитной границы раздела, свойства которой отличаются от свойств интерфейса Co/Pt. Введение второго слоя тяжелого металла, граничащего с нанослоем кобальта, должно привести к усилению асимметрии структуры и усилению магнитооптических эффектов. Таким образом, в данной работе с использованием метода генерации ВГ экспериментально исследованы особенности магнитных нелинейно-оптических эффектов в асимметричной трехслойной наноструктуре (Pt/Co/Ta), в которой слой кобальта помещен между слоями двух различных тяжелых металлов (платины и тантала), формирующих несимметричные магнитные границы раздела. Показано, что в таких пленочных структурах величина магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра значительно превосходит аналогичный эффект для единичных магнитных границ раздела.

¹⁾e-mail: murzina@mail.ru

Трехслойные Pt/Co/Ta пленки с толщинами слоев 3 нм изготовлены методом магнетронного напыления [13] на неподвижных стеклянных или кремниевых подложках, плоскости подложек и мишени были параллельны. Для формирования магнитной анизотропии, в процессе напыления подложки были помещены в статическое магнитное поле с напряженностью ≈ 1 кЭ. Малая толщина слоев металлов обеспечивала прозрачность пленки для излучения накачки и ВГ. Методами магнетометрии и линейного меридионального магнитооптического эффекта Керра показано, что перемагничивание структуры для любого ее азимутального положения достигается при напряженности поля $|H| \leq 100$ Э.

При исследовании генерации ВГ в качестве накачки использовалось излучение импульсного лазера на титанате сапфира (длина волны 830 нм, длительность импульса 50 фс, средняя мощность 50 мВт, p -поляризация), которое фокусировалось на поверхность образца в пятно с диаметром 30 мкм; угол падения составлял 45° . Отраженное излучение ВГ проходило через систему фильтров, отсекающих мощное излучение накачки, анализатор, и детектировалось фотоэлектронным умножителем (ФЭУ), работавшим в режиме счета фотонов. Образец был расположен между полюсами электромагнита, создающего меридиональное магнитное поле до 1.5 кЭ; при измерении азимутальной зависимости интенсивности ВГ образец помещался на вращающийся столик.

Исследование магнитоиндуцированных эффектов на частоте ВГ проводилось для двух случаев: (i) меридионального эффекта Керра на частоте ВГ, заключающегося во вращении плоскости поляризации волны ВГ; при этом измерялась интенсивность так называемой *mixed* (промежуточной между p и s) поляризации ВГ, ось анализатора составляла угол 45° с плоскостью поляризации излучения накачки; и (ii) p -поляризации излучения ВГ, изменения которой не ожидается при данной ориентации магнитного поля для однородных магнитных сред [7].

1. В качестве первого шага была изучена азимутальная анизотропия ВГ – измерены азимутальные зависимости интенсивности p - и s -поляризованных компонент ВГ, что позволяет, как показано ранее [13], определить ориентацию оси легкого намагничивания в плоскости структуры и воспроизводимым образом позиционировать образец. На рисунке 1 представлены зависимости интенсивности ВГ в трехслойной Pt/Co/Ta пленке после того, как было приложено и затем выключено постоянное плоскостное поле положительное (красные символы) и отрицательное (синие закрытые символы), напряженно-

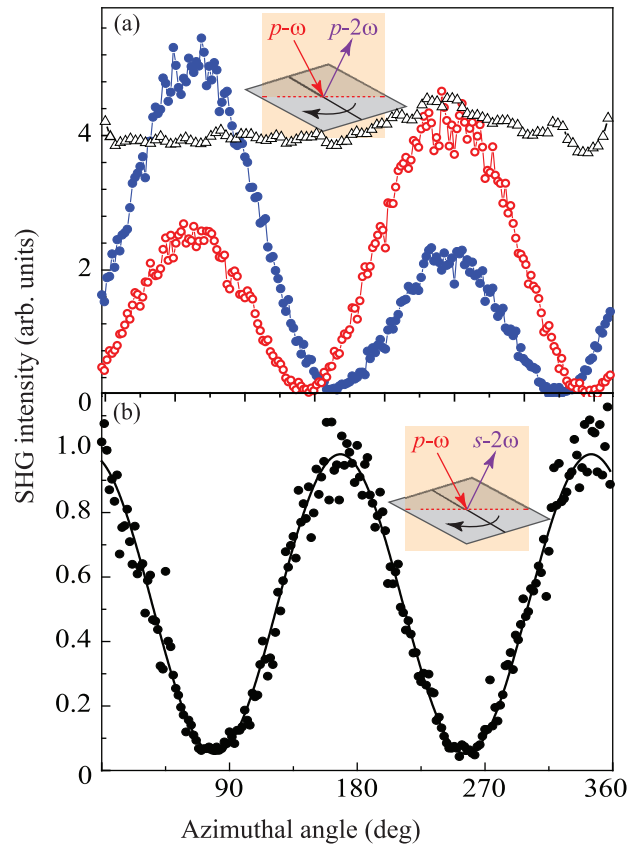


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Зависимости интенсивности p -поляризованной ВГ от азимутального угла поворота образца после приложения и затем выключения меридионального магнитного поля противоположных знаков (синие и красные заполненные и открытые символы); аналогичная зависимость в случае, когда к пленке приложено постоянное меридиональное поле 1.5 кЭ (открытые треугольники). (b) – Азимутальная зависимость интенсивности s -поляризованной составляющей ВГ после выключения постоянного магнитного поля

стью 1.5 кЭ. В этом случае симметрия квадратичного нелинейно-оптического отклика определяется кристаллографической анизотропией пленки, а также магнитоиндуцированным вкладом в нелинейную поляризацию на частоте ВГ, связанную с ориентацией остаточной намагниченности. Видно, что после перемагничивания пленки, т.е. для противоположных ориентаций остаточной намагниченности, наблюдается смена взаимного расположения двух азимутальных максимумов, разнесенных на 180° . В то же время, азимутальная зависимость p -поляризованной ВГ в присутствии постоянного меридионального поля $H = 2$ кЭ (черные треугольные символы) близка к изотропной, что указывает на малость кристаллографической анизотропии пленок.

Азимутальная зависимость s-поляризованной составляющей ВГ после отключения плоскостного поля, приложенного под небольшим углом к оси легкого намагничивания, содержит два максимума равной амплитуды, связанных с ориентацией оси легкого намагничивания; минимумы данных зависимостей (максимумы для p-поляризованной ВГ) соответствуют параллельности оси легкого намагничивания плоскости падения излучения накачки. В описанных ниже экспериментах образец позиционировали таким образом, что ось легкого намагничивания составляла угол $\Psi = \pm 45^\circ$ к приложенному меридиональному магнитному полю.

2. На рисунке 2 приведены зависимости интенсивности ВГ от напряженности меридионального

магнитного поля \mathbf{H} для *mixed* и p-поляризованной составляющих ВГ; красные символы соответствуют ветви зависимости при проходе от положительных к отрицательным значениям H , синие – противоположному случаю. Ось легкого намагничивания образца составляла угол $\Psi = +45^\circ$ с приложенным меридиональным магнитным полем. При регистрации *mixed* поляризации излучения ВГ наблюдается гистерезис интенсивности ВГ с выходом на насыщение при $|\mathbf{H}| \approx 300$ Э, что превышает поле насыщения в линейном магнитооптическом эффекте Керра (< 100 Э). Поскольку основные источники магнитоиндуцированной ВГ локализованы на границах раздела Co/Pt и Co/Ta, следует предположить, что поля перемагничивания интерфейсов превышают таковые для “объема” пленки. Отметим также большую величину магнитного контраста интенсивности ВГ, $\rho_{2\omega} = \frac{I_{2\omega}(+H) - I_{2\omega}(-H)}{I_{2\omega}(+H) + I_{2\omega}(-H)}$, которая составляет около 60%; здесь $I_{2\omega}(\pm H)$ соответствуют интенсивности ВГ для напряженности магнитного поля соответствующего знака.

Особенностью графика на рисунке 2а является наличие резких выбросов интенсивности ВГ (максимума и минимума для разных ветвей гистерезиса) вблизи нулевого значения напряженности магнитного поля, отражающие процессы перемагничивания пленки; при этом относительные изменения интенсивности ВГ, соответствующие вкладу экваториального эффекта Керра на частоте ВГ, достигают 30%.

На рисунке 2b приведены зависимости интенсивности p-поляризованной компоненты ВГ от напряженности меридионального магнитного поля. Несмотря на то, что для таких условий эксперимента и для однородных магнетиков изменений сигнала ВГ не ожидается [7], отчетливо виден гистерезис интенсивности ВГ с шириной петли менее 50 Э, причем интенсивность ВГ различна для положительных и отрицательных значений меридионального поля $|\mathbf{H}| > 300$ Э, магнитный контраст интенсивности ВГ составляет около 24%. Для сравнения, максимальные значения аналогичного “запрещенного” эффекта в случае бислойных пленок Co/Pt и Co/Ta не превышают единиц процентов. Заметим, что выбросы интенсивности ВГ вблизи значений $H = \pm 50$ Э также отражают процессы перемагничивания пленки кобальта путем ее разворота в плоскости; при этом максимумы интенсивности соответствуют случаю, когда намагниченность перпендикулярна плоскости падения излучения накачки, т.е. экваториальному магнитооптическому эффекту Керра. Для него величина магнитного контраста достигает 60%, что в несколько раз

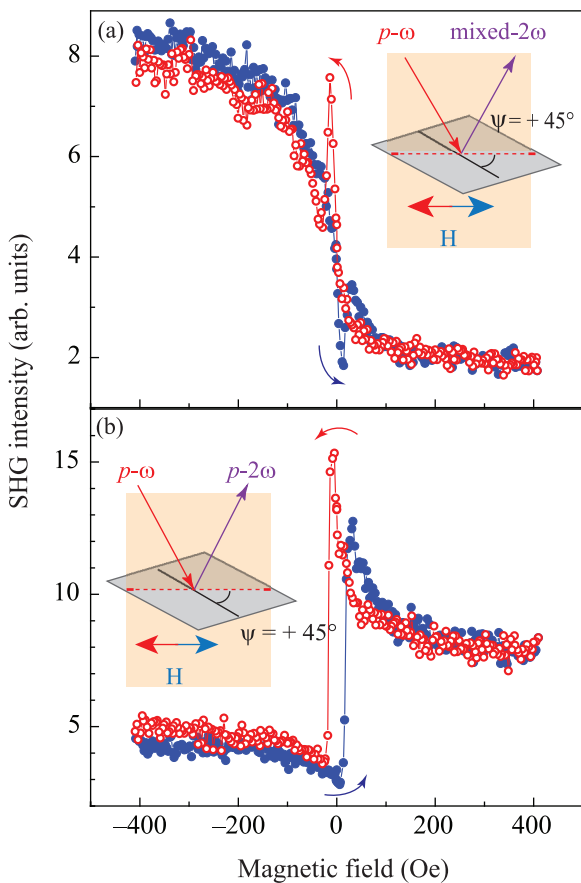


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости интенсивности ВГ для азимутального положения образца $\Psi = +45^\circ$ для *mixed* (a) и p-поляризованной (b) составляющих ВГ; открытые красные символы соответствуют изменению магнитного поля от положительных к отрицательным значениям, синие заполненные – обратному случаю. Вставки: схемы геометрии эксперимента, ориентация оси легкого намагничивания (сплошная линия) относительно плоскости падения (меридионального магнитного поля)

превышает аналогичные величины для бислойных пленок.

3. Для более полного изучения процесса перемагничивания трехслойной структуры Pt/Co/Ta аналогичные измерения были выполнены для другого азимутального положения оси легкого намагничивания образца, $\Psi = -45^\circ$, относительно меридионального магнитного поля; при этом положение анализатора при измерении *mixed* поляризации ВГ оставалось неизменным (рис. 3). Отметим, что форма ги-

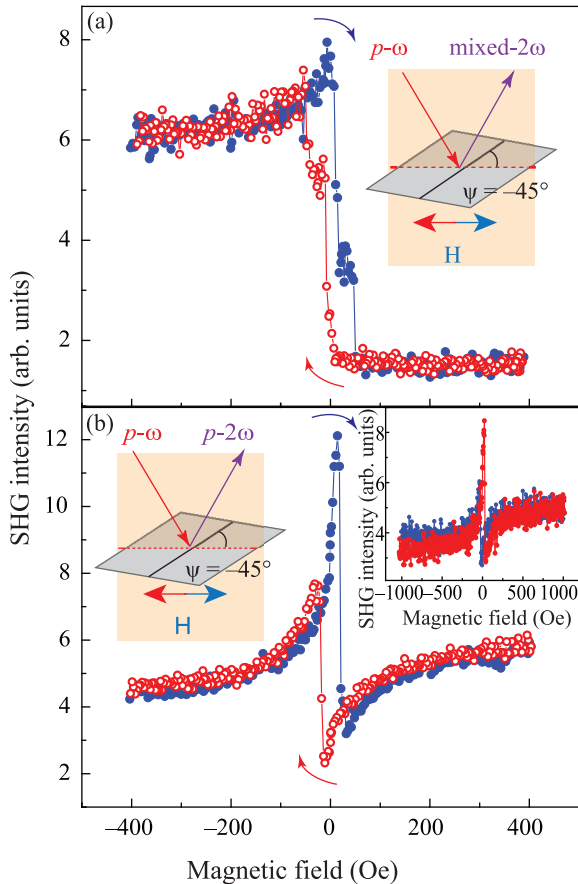


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Зависимости интенсивности ВГ для азимутального положения образца $\Psi = -45^\circ$ для *mixed* (а) и *p*-поляризованной (б) составляющих ВГ; открытые красные символы соответствуют изменению магнитного поля от положительных к отрицательным значениям, синие заполненные – обратному случаю. На вставках: схемы геометрии эксперимента и ориентации оси легкого намагничивания (сплошная линия) относительно плоскости падения

стерезиса для *mixed*-поляризации ВГ значительно изменилась; появились изломы, связанные с перемагничиванием пленки кобальта, а также ступеньки вместо одного выраженного резкого выброса сигнала ВГ для $\Psi = +45^\circ$. В то же время, модуляция

интенсивности ВГ в насыщающих магнитных полях $H \approx 400$ Э характеризуется такой же величиной контраста $\rho_{2\omega} \approx 60\%$.

Из сравнения зависимостей, в особенности приведенных на рис. 2b и 3b, следует, что направления поворота плоскости поляризации противоположны для этих двух азимутальных ориентаций структуры в магнитном поле. Действительно, последовательность появления максимума и минимума интенсивности *p*-поляризованной ВГ различны для обеих ветвей магнитного гистерезиса. В то же время, величина “запрещенной” модуляции интенсивности *p*-поляризованной компоненты ВГ для $\Psi = -45^\circ$ меньше и составляет около 10%; она сохраняется и для значений магнитного поля вплоть до 1.5 кЭ, как следует из графиков, приведенных на вставке к рис. 3b.

Обсудим возможные механизмы наблюдавшихся магнитоиндуцированных зависимостей ВГ. Основным источником ВГ в структурах на основе centrosymmetric металлов являются границы раздела кобальта. Однако для тонкого (3 нм) слоя Co разделить границы и “объем” пленки затруднительно и следует предположить, что “объем” также участвует в процессе генерации ВГ за счет, например, квадрупольного механизма нелинейности [9]. На это указывают и сильные изменения сигнала ВГ в области перемагничивания пленки, соответствующие области гистерезиса линейного магнитного эффекта Керра.

Зависимости интенсивности *mixed* и *p*-поляризованного излучения ВГ от магнитного поля показывают, что перемагничивание пленки кобальта в трехслойной структуре Pt/Co/Ta происходит путем разворота намагниченности, его направление определяется ориентацией оси легкого намагничивания по отношению к приложенному меридиональному полю. Большое значение поля насыщения для гистерезисов интенсивности ВГ связано, по-видимому, с особенностью магнитных свойств интерфейсов кобальта с тяжелыми металлами.

Необходимо отметить значительную величину магнитоиндуцированных эффектов для исследованной структуры, превышающую типичные значения для бислойных ферромагнитных пленок [13, 16, 17]. Действительно, из анализа магнитных гистерезисов интенсивности ВГ следует, что угол поворота плоскости поляризации волны второй гармоники при перемагничивании структуры составляет около 37° , а максимальный контраст интенсивности ВГ – около 60%. Таким образом, эффективные магнитоиндуцированные составляющие электромагнитного поля на частоте ВГ лишь в три раза меньше

немагнитной (кристаллографической) компоненты. Такие высокие значения магнитных эффектов в нелинейно-оптическом отклике объясняются, по-видимому, дополнительной структурной асимметрией пленки, возникающей за счет различия границ раздела Pt/Co и Co/Ta.

Можно высказать ряд предположений о природе модуляции интенсивности p -поляризованной ВГ меридиональным магнитным полем в структурах на основе ферромагнитного и тяжелых металлов. Известно, что в таких системах присутствует асимметричное интерфейсное взаимодействие Дзялошинского–Мории, значительно меняющее магнитные свойства приповерхностных слоев ферромагнитного металла за счет поверхностной магнитной анизотропии, формирования киральных распределений намагниченности, а также диффузии материалов, механических напряжений и проч. [1, 18]. В то же время, метод генерации ВГ обладает высокой чувствительностью к нарушению симметрии, особенно в случае центросимметричных сред. На существенную роль границ раздела ферромагнетика в появлении “запрещенного” эффекта указывает его усиление в трехслойной Pt/Co/Ta пленке с различными по своим свойствам границами раздела по сравнению с бислойными структурами Pt/Co, Co/Ta [13].

Таким образом, в несимметричной анизотропной трехслойной структуре Pt/Co/Ta обнаружены гигантские магнитоиндуцированные эффекты при генерации оптической второй гармоники: перемагничивание пленки меридиональным магнитным полем сопровождается поворотом плоскости поляризации волны ВГ более чем на 35° , что соответствует относительной величине магнитоиндуцированной квадратичной восприимчивости в десятки процентов. На основании анализа магнитных гистерезисов интенсивности ВГ для различных азимутальных положений пленки в меридиональном поле показано, что перемагничивание структуры осуществляется путем ее разворота в плоскости, причем его направление зависит от ориентации оси легкого намагничивания относительно приложенного поля.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, грант # 19-72-20103, с использованием оборудования ЦКП “Физика и технология микро- и наноструктур”. Работа НСГ выполнена

при поддержке гранта Российского научного фонда # 16-12-10340-П.

Авторы благодарны Е. А. Караштину и А. А. Фраерману за стимулирующие обсуждения.

1. F. Hellman, A. Hoffmann, Y. Tserkovnyak et al. (Collaboration), *Rev. Mod. Phys.* **89**, 025006 (2017).
2. I. Zutíć, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323 (2004).
3. Е. А. Караштин, Письма в ЖЭТФ **108** (2), 88 (2018).
4. Р. Б. Моргунов, Г. Л. Львова, Письма в ЖЭТФ **108**(2), 124 (2018).
5. С. В. Тарасенко, В. Г. Шавров, Письма в ЖЭТФ **109**(6), 393 (2019).
6. О. А. Максимова, С. А. Лященко, М. А. Высотин, И. А. Тарасов, И. А. Яковлев, Д. В. Шевцов, А. С. Федоров, С. Н. Варнаков, С. Г. Овчинников, Письма в ЖЭТФ **110**(3), 155 (2019).
7. R. P. Pan, H. D. Wei, and Y. R. Shen, *Phys. Rev. B* **39**, 1229 (1989).
8. A. Kirilyuk and Th. Rasing, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 148 (2005).
9. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, N.Y. (1984).
10. V. L. Krutyanskiy, I. A. Kolmychek, B. A. Gribkov, E. A. Karashtin, E. V. Skorohodov, and T. V. Murzina, *Phys. Rev. B* **88**(9), 094424 (2013).
11. K. Sato, A. Kodama, and M. Miyamoto, *Phys. Rev. B* **64**, 184427 (2001).
12. I. A. Kolmychek, V. L. Krutyanskiy, T. V. Murzina, M. V. Sapozhnikov, E. A. Karashtin, V. V. Rogov, and A. A. Fraerman, *J. Opt. Soc. Am. B* **32**, 331 (2015).
13. И. А. Колмычек, В. В. Радовская, К. А. Лазарева, Е. Е. Шальгина, Н. С. Гусев, А. И. Майдыковский, Т. В. Мурзина, *ЖЭТФ* **157**(4), 661 (2020).
14. K. W. Kim, H. W. Lee, K. J. Lee, and M. D. Stiles, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 216601 (2013).
15. J. Cho, N.-H. Kim, S. Lee, J.-S. Kim, R. Lavrijsen, A. Solignac, Y. Yin, D.-S. Han, N. J. J. van Hoof, H. J. M. Swagten, B. Koopmans, and C.-Y. You, *Nat. Comm.* **6**, 7635 (2015).
16. J. Reif, J. C. Zink, C. M. Schneider, and J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.* **67**(20), 2878 (1991).
17. W. Hübner, K. H. Bennemann, and K. Böhmer, *Phys. Rev. B* **50**(17), 597 (1994).
18. A. Fert and P. M. Levy, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1538 (1980).