

# Генерация магнитоиндуцированной третьей оптической гармоники в магнитных наногранулярных пленках: корреляция с гигантским магнитосопротивлением

Т. В. Мурзина<sup>1)</sup>, Е. М. Ким, С. Е. Мацкевич, О. А. Акципетров, А. Ф. Кравец<sup>+</sup>, А. Я. Вовк<sup>+</sup>

Физический факультет Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова  
119992 Москва, Россия

<sup>+</sup> Институт магнетизма Национальной АН Украины, 03680 Киев, Украина

Поступила в редакцию 24 ноября 2003 г.

После переработки 8 января 2004 г.

Обнаружена генерация магнитоиндуцированной третьей оптической гармоники (ТГ) в магнитных наноструктурах, обладающих гигантским магнитосопротивлением (ГМС), – наногранулярных пленках  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$ . Исследована зависимость магнитоиндуцированного вклада в интенсивность ТГ от концентрации магнитной компоненты (кобальта) в пленках. Обнаружена корреляция магнитного контраста интенсивности ТГ и коэффициента ГМС, проявляющаяся в одновременном достижении этими параметрами экстремума в области концентраций кобальта  $x \sim 0.3 \div 0.35$ .

PACS: 42.65.Ky, 76.60.–k

Магнитные наноструктуры привлекают внимание в течение последних двух десятилетий благодаря наблюдению в них необычных магнитных и магнитооптических эффектов, таких как осцилляция обменного взаимодействия между магнитными слоями, разделенными немагнитной прослойкой [1], спинзависящее рассеяние и туннелирование [2, 3], гигантское магнитосопротивление (ГМС) [4], гигантский нелинейный магнитооптический эффект Керра (ГМК) при генерации второй оптической гармоники (ВГ) [5] и др. Последние два эффекта наблюдались в мультислойных магнитных структурах и в магнитных наногранулярных сплавах, представляющих собой немагнитные (диэлектрические или металлические) матрицы с распределенными в их объеме магнитными наночастицами [6].

Транспортные свойства таких магнитных наноструктур, в том числе и ГМС, в значительной степени определяются структурой внутренних границ раздела мультислоев (наночастиц) и материала матрицы [7]. В то же время, высокой чувствительностью к свойствам границ раздела отличаются нелинейно-оптические эффекты и, в первую очередь, генерация оптической ВГ, которая запрещена в электродипольном приближении в объеме centrosymmetric сред (в том числе и в металлах). Источниками ВГ в этом случае являются поверхности и внутрен-

ние границы раздела, для которых центр инверсии отсутствует [8].

В магнитных средах одновременное нарушение как симметрии по отношению к инверсии времени вследствие намагниченности, так и пространственной инверсионной симметрии на поверхностях и границах раздела вследствие разрыва структуры приводит к появлению дополнительных – магнитоиндуцированных – компонент тензора квадратичной восприимчивости, что обуславливает появление поверхностной (интерфейсной) магнитоиндуцированной ВГ. Уникальная чувствительность магнитоиндуцированной ВГ к магнетизму низкоразмерных систем позволила применить эффект генерации магнитоиндуцированной ВГ для изучения магнитных свойств поверхностей и тонких пленок ферромагнетиков, магнитных сверхрешеток и наночастиц [9]. При изучении генерации ВГ в магнитных наногранулярных пленках был обнаружен интенсивный нелинейно-оптический магнитный эффект Керра, причем зависимость величины магнитного контраста интенсивности магнитоиндуцированной ВГ от концентрационного состава пленок качественно совпадала с зависимостью коэффициента ГМС [10].

До настоящего времени практически вся нелинейная магнитооптика концентрировалась на исследовании магнитоиндуцированной ВГ, а то обстоятельство, что для магнитных наноструктур генерация третьей оптической гармоники (ТГ) может быть также весьма информативной, обходилось вниманием и

<sup>1)</sup>e-mail: mur@shg.ru

генерация магнитоиндуцированной ТГ в магнитных наноструктурах ранее не наблюдалась.

В настоящей работе наблюдалась генерация магнитоиндуцированной ТГ в магнитных наногранулярных пленках, обладающих ГМС. Обнаружена корреляция магнитного контраста интенсивности ТГ и коэффициента ГМС как функций концентрации магнитной компоненты в наногранулярных пленках  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$ . Проведено сравнение с подобными эффектами при генерации магнитоиндуцированной ВГ.

Образцы наногранулярных пленок  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$ , где  $0.04 < x < 0.9$  – атомная доля Co, были получены методом раздельного электронно-лучевого соиспарения Co и Ag из двух источников в условиях высокого ( $10^{-4}$  Па) вакуума и конденсации смешанных паров металлов на подложки из ситалла при комнатной температуре. Толщина пленок составляла около 200 нм. Состав пленок был определен методом EDXA. Кристаллическая структура пленок была определена методом рентгеновской дифракции. Для оценки размеров магнитных гранул применялся анализ данных SQUID-магнитометрии и кривых намагничивания гранулированных пленок по методике, описанной в работе [2]. Магнитосопротивление пленок измерялось методом четырех контактов при комнатной температуре в магнитном поле до 8 кЭ.

Анализ показал, что гранулированные пленки при  $x < 0.5$  содержат гранулы Co со средним размером 3 Å. В области существования гранулированной структуры,  $x < 0.5$ , пленки  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$  характеризуются ГЦК (111) структурой Co гранул, когерентно соответствующей ГЦК структуре матрицы Ag.

Генерация магнитоиндуцированной ТГ наблюдалась при воздействии на поверхность гранулярных пленок излучения YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазера с длиной волны 1064 нм, импульсной плотностью мощности 10 МВт/см<sup>2</sup>, длительностью импульса 15 нс и частотой следования импульсов 25 Гц. Выделенные соответствующими фильтрами излучение ТГ, отраженное от гранулярных пленок, регистрировалось фотоэлектронным умножителем и стробируемой электронной системой регистрации. Аналогично в тех же пленках исследовалась и магнитоиндуцированная ВГ. Магнитное поле напряженностью около 2 кЭ, ориентированное в плоскости пленок, создавалось с помощью постоянных магнитов.

На рис.1 представлены азимутальные угловые зависимости интенсивности ВГ для образца  $\text{Co}_{0.4}\text{Ag}_{0.6}$  для *pp*- и *ss*-комбинаций поляризаций, где первый индекс указывает поляризацию излучения ВГ, а второй – поляризацию излучения накачки. Аналогичные зависимости были получены для всех исследо-

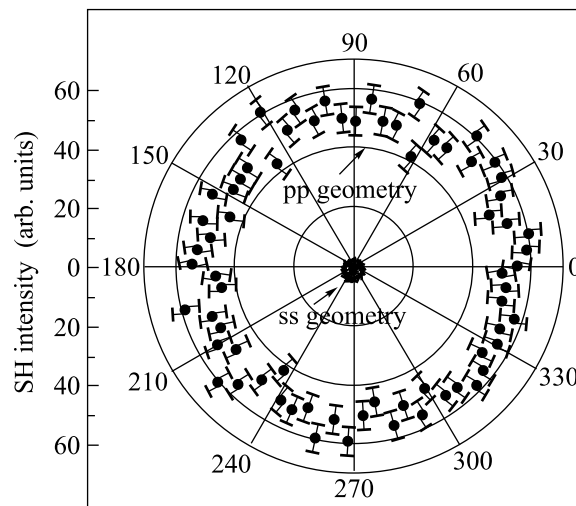


Рис.1. Азимутальная зависимость интенсивности ВГ для *pp* и *ss* комбинаций поляризаций для пленки состава  $\text{Co}_{0.4}\text{Ag}_{0.6}$

ванных образцов  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$ . Изотропный характер этих зависимостей указывает, прежде всего, на отсутствие анизотропии свойств в плоскости пленок, что позволяет при исследовании магнитоиндуцированных нелинейно-оптических эффектов рассматривать эти пленки как изотропные. Кроме того, наличие ненулевой изотропной *ss* составляющей интенсивности ВГ является нарушением так называемого *ss*-запрета [11], что обусловлено, по-видимому, гранулярностью структуры пленок и является признаком гиперрелеевского рассеяния второго порядка: появлением некогерентной диффузной компоненты ВГ [12].

Рассмотрим, наблюдение каких магнитоиндуцированных эффектов во второй и третьей гармониках возможно для изотропной магнитной пленки. Нелинейная поляризация может быть представлена в виде

$$P(2\omega, 3\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(M) : E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)}(M) : E_j E_k E_l, \quad (1)$$

где  $\chi^{(2)}$  и  $\chi^{(3)}$  – тензоры квадратичной и кубической восприимчивости, определяющие процессы генерации ВГ и ТГ, которые в общем случае являются функциями намагниченности среды,  $M$ ,  $E_j$  –  $j$ -ая компонента поля накачки. Последовательное рассмотрение вида материальных тензоров различных рангов для намагниченных сред всех точечных групп симметрии было проведено в [13]. Следуя подходу к описанию магнитоиндуцированных эффектов во ВГ, развитому в [14], тензор квадратичной восприимчивости намагниченной среды можно представить в виде суммы четной (even) и нечетной (odd) по на-

	$\chi^{(\text{even})} (M \parallel 0)$	$\chi^{(\text{odd})} (M \parallel Y)$	$\chi^{(\text{odd})} (M \parallel X)$
ВГ	$\chi_{zzz}^{(2)}, \chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{zyy}^{(2)}, \chi_{xxx}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)}$	$\chi_{xyy}^{(2),M}, \chi_{xxx}^{(2),M}, \chi_{yyx}^{(2),M}, \chi_{zzz}^{(2),M}, \chi_{zzx}^{(2),M}$	$\chi_{yyy}^{(2),M}, \chi_{yxx}^{(2),M}, \chi_{yzz}^{(2),M}$
ТГ	$\chi_{zzzz}^{(3)}, \chi_{xxxx}^{(3)} = \chi_{yyyy}^{(3)}, \chi_{zzxx}^{(3)} = \chi_{zzyy}^{(3)}$ $\chi_{xyyy}^{(3)} = \chi_{yxxx}^{(3)}, \chi_{xxxx}^{(3)} = \chi_{yyzz}^{(3)}$	$\chi_{zzz}^{(3),M}, \chi_{xxx}^{(3),M}, \chi_{zzx}^{(3),M}, \chi_{yxx}^{(3),M}, \chi_{xxx}^{(3),M}, \chi_{yzz}^{(3),M}$	$\chi_{yyy}^{(3),M}, \chi_{yxx}^{(3),M}, \chi_{yzz}^{(3),M}$

**Примечание.** Четные и нечетные по намагниченности компоненты квадратичной и кубической восприимчивости,  $\chi^{(\text{even})}$  и  $\chi^{(\text{odd})}$ , последние вычислены для геометрии экваториального ( $M \parallel Y$ ) и меридионального ( $M \parallel X$ ) магнитооптического эффекта Керра.

магнитоиндуцированной составляющих,  $\chi_{ijk}^{(2)}(M) = \chi_{ijk}^{(2,\text{even})} \pm \chi_{ijk}^{(2,\text{odd})}(M)$ , первая из которых инвариантна по отношению к инверсии намагниченности, а вторая меняет знак при изменении направления  $M$ . Аналогично, для генерации ТГ тензор кубической восприимчивости может быть представлен в виде  $\chi_{ijkl}^{(3)}(M) = \chi_{ijkl}^{(3,\text{even})} \pm \chi_{ijkl}^{(3,\text{odd})}(M)$ .

В таблице приведены ненулевые компоненты тензоров  $\chi^{(2)}$  и  $\chi^{(3)}$ . Система координат выбрана таким образом, что ось  $Z$  перпендикулярна поверхности пленки, а плоскость ( $XZ$ ) совпадает с плоскостью падения излучения накачки (см. вставку на рис.2а). Как следует из таблицы, в отсутствие внешнего магнитного поля генерация ВГ возможна только для  $pp$  и  $sp$ , а генерация ТГ – для  $pp$  и  $ss$  комбинаций поляризаций. В зависимости от геометрии наложения внешнего магнитного поля возможно наблюдение различных магнитоиндуцированных эффектов при генерации ВГ и ТГ. Для экваториального эффекта Керра, когда магнитное поле направлено вдоль оси  $Y$ , появляется только  $p$ -поляризованная магнитоиндуцированная составляющая ВГ и ТГ (таблица, второй столбец). В этом случае изменение направления приложенного магнитного поля приводит к появлению нечетных по  $M$  изменений интенсивности соответствующей гармоники, поскольку общая интенсивность ВГ/ТГ может быть представлена в виде

$$I_{2\omega,3\omega}(M) \sim (E_{2\omega/3\omega}^{\text{even}} + E_{2\omega/3\omega}^{\text{odd}})^2 = E_{2\omega/3\omega}^{\text{even}^2} + 2 \cos(\phi) E_{2\omega/3\omega}^{\text{even}} E_{2\omega/3\omega}^{\text{odd}} + E_{2\omega/3\omega}^{\text{odd}^2}, \quad (2)$$

где член вида  $E_{2\omega/3\omega}^{\text{even}} (E_{2\omega/3\omega}^{\text{odd}})$  ответственен за четный (нечетный) магнитный эффект, соответственно,  $\phi$  – разность фаз между  $E_{2\omega/3\omega}^{\text{odd}}$  и  $E_{2\omega/3\omega}^{\text{even}}$  (вставка на рис.2b). Мерой магнитоиндуцированного изменения интенсивности сигнала, по аналогии с принятым в магнитооптике, является магнитный контраст

$$\mathcal{Q}_{2\omega,3\omega} = (I_{2\omega,3\omega}(\uparrow) - I_{2\omega,3\omega}(\downarrow)) / (I_{2\omega,3\omega}(\uparrow) + I_{2\omega,3\omega}(\downarrow)) = 4E_{2\omega,3\omega}^{\text{even}} E_{2\omega,3\omega}^{\text{odd}} \cos(\phi) / (I_{2\omega,3\omega}(\uparrow) + I_{2\omega,3\omega}(\downarrow)), \quad (3)$$

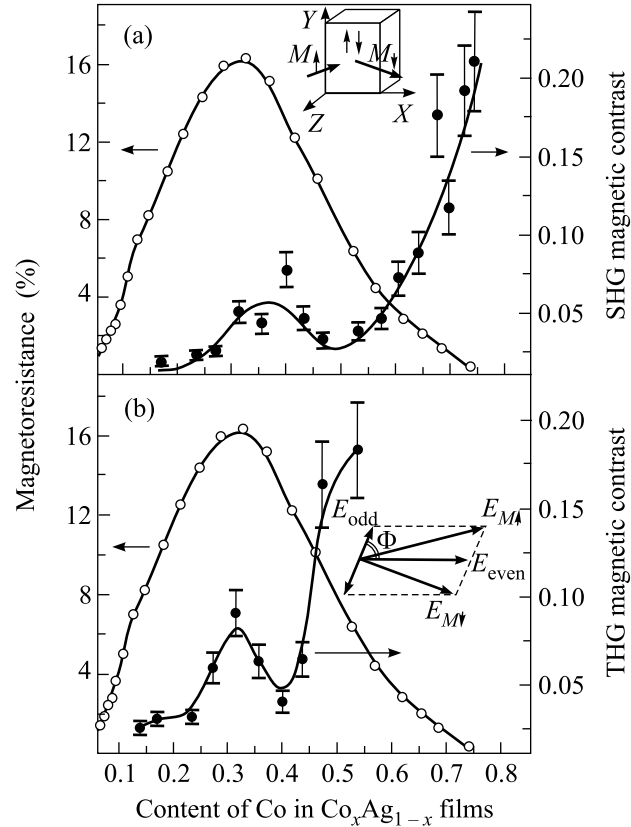


Рис.2. Зависимости магнитосопротивления и магнитного контраста интенсивности ВГ (а) и ТГ (б) в геометрии экваториального магнитного эффекта Керра для  $pp$  комбинации поляризаций от концентрации магнитной компоненты  $x$ , в пленках состава  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$ . На вставках: геометрия измерений для экваториального эффекта Керра (верхняя панель); векторная диаграмма сложения четной и нечетной по намагниченности компонент полей ВГ и ТГ (нижняя панель)

где  $I_{2\omega,3\omega}(\uparrow)$  и  $I_{2\omega,3\omega}(\downarrow)$  – интенсивности ВГ, измеренные для противоположных направлений магнитного поля. Таким образом, при измерении магнитного контраста оказываются важными как отношение амплитуд полей магнитной и немагнитной ВГ (ТГ), так и фазовые соотношения между ними. Поэтому измерение интенсивностного магнитного контраста

сопровождалось измерениями фазы полей гармоник методом интерферометрии ВГ или ТГ [15].

Заметим, что среди четных и нечетных компонент квадратичной и кубичной восприимчивости нет повторяющихся. Это означает, что в общем случае френелевские факторы и факторы локального поля для этих компонент могут быть различны, что может приводить к разной спектральной зависимости немагнитных и магнитных составляющих полей ВГ и ТГ.

Для меридионального эффекта Керра, как следует из таблицы, для  $p$ -поляризованного излучения накачки появляются нечетные по намагниченности  $s$ -поляризованные компоненты ВГ и ТГ, что приводит к повороту плоскости поляризации волн второй и третьей гармоник. Для пленки состава  $\text{Co}_{0.4}\text{Ag}_{0.6}$  магнитоиндуцированный угол поворота плоскости поляризации волны ВГ составил  $10^\circ \div 15^\circ$ .

На рис.2а представлены зависимости коэффициента ГМС и магнитного контраста интенсивности магнитоиндуцированной ВГ в пленках  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$  в геометрии экваториального эффекта Керра от концентрации кобальта  $x$ . Максимальное значение коэффициента ГМС достигается для  $x \sim 0.33$ . Магнитный контраст интенсивности ВГ также демонстрирует максимум в диапазоне  $x = 0.3 \div 0.4$  с последующим ростом при  $x > 0.55$ . На рис.2b приведена аналогичная зависимость магнитного контраста для интенсивности ТГ. Как и для ВГ, наблюдается локальный максимум магнитного контраста ТГ в окрестности  $x = 0.3 \div 0.4$ , соответствующего максимуму ГМС.

Для учета фазовых соотношений между четным и нечетным по намагниченности вкладами во ВГ и ТГ, в геометрии экваториального эффекта Керра для противоположных направлений магнитного поля был измерен магнитоиндуцированный сдвиг фаз волн второй и третьей гармоник. Схема метода интерферометрии магнитоиндуцированной ВГ и ТГ представлена на рис.3а. Зависимости интенсивности ВГ/ТГ от положения эталонного источника ВГ/ТГ представлены на рис.3b,c. Периоды интерференционной картины оказались существенно различными ( $\sim 13$  см и  $\sim 3$  см), что связано с дисперсией показателя преломления воздуха на частотах ВГ и ТГ (532 нм и 355 нм). В обоих случаях магнитоиндуцированный фазовый сдвиг составляет около  $10^\circ$ , поэтому им можно пренебречь при оценке отношения  $\chi^{(\text{odd})}/\chi^{(\text{even})}$ , и магнитный контраст, измеренный в эксперименте, отражает соотношение эффективных четных и нечетных по намагниченности компонент тензоров нелинейных восприимчивостей.

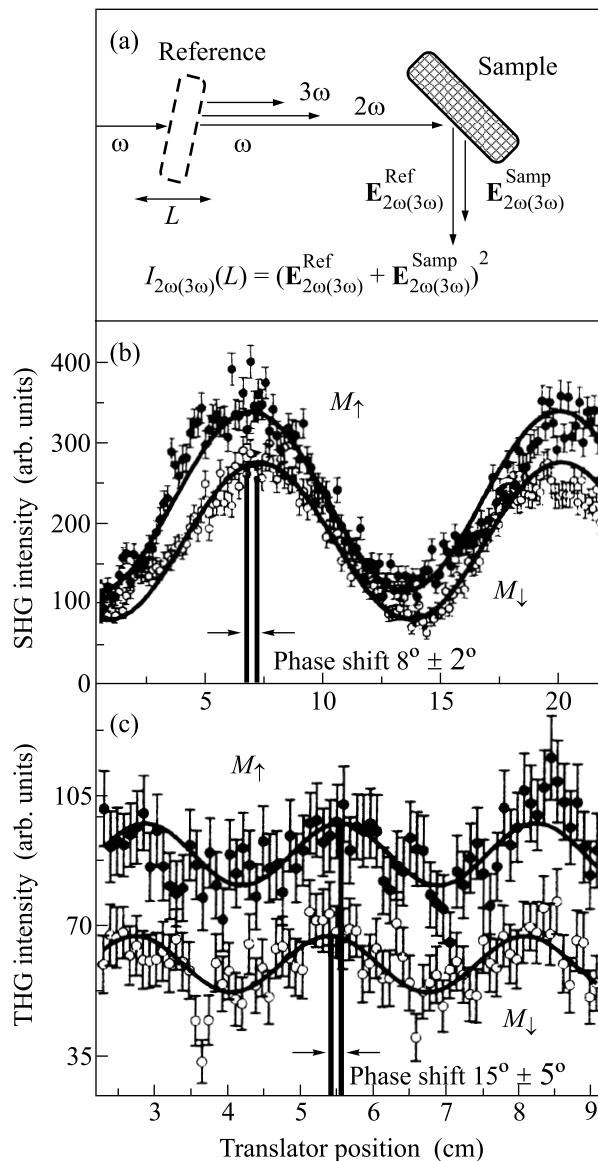


Рис. 3. (а) Схема измерения интерферометрии магнитоиндуцированных ВГ и ТГ; (b), (c) – зависимости интенсивности магнитоиндуцированной ВГ и магнитоиндуцированной ТГ, соответственно, от положения эталонного источника ВГ/ТГ, полученные при измерении интерферометрии магнитоиндуцированных ВГ и ТГ в геометрии экваториального магнитного эффекта Керра для  $pp$ -комбинации поляризаций

Таким образом, очевидно наблюдается корреляция магнитного контраста для интенсивностей магнитоиндуцированных третьей и второй оптических гармоник и коэффициента гигантского магнитосопротивления, проявляющаяся в одинаковой зависимости этих эффектов от композиционного состава пленок. В случае генерации магнитоиндуцированной ВГ максимум в окрестности  $x = 0.3 \div 0.4$  оказывается

менее выраженным, что связано с локальным возрастанием интенсивности немагнитной компоненты ВГ для этих значений  $x$ .

Среди эффектов, которые могут играть существенную роль в нелинейном магнитооптическом эффекте Керра и его корреляции с ГМС в наногранулярных пленках, в первую очередь следует рассмотреть возможность возбуждения локальных поверхностных плазмонов. Как было показано в [10], возбуждение поверхностных плазмонов оптических частот в металлических магнитных наночастицах, окруженных немагнитной металлической матрицей, возможно для наногранулярных систем и может приводить к генерации ВГ. В этом случае следует ожидать появления частотной зависимости магнитного контраста, поскольку резонансные свойства четной и нечетной по намагниченности составляющих полей ВГ/ТГ должны быть различны, что следует из различного вида компонент тензоров нелинейной восприимчивости (см. таблицу). В то же время, как было показано в [10], такая зависимость отсутствует для генерации магнитоиндуцированной ВГ в пленках  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$  для разных длин волн излучения накачки (1064 нм и 800 нм). В настоящей работе также получены качественно совпадающие зависимости магнитного контраста во второй и третьей гармониках, что указывает на отсутствие спектральной зависимости магнитного контраста на частотах регистрируемого сигнала. Наблюдаемая в эксперименте корреляция магнитного контраста ВГ/ТГ связана, по-видимому, с особенностями структуры пленок вблизи порога перколяции и связанным с ним возрастанием [16] немагнитной составляющей нелинейно-оптического отклика, существенно влияющей на магнитный контраст.

В заключение отметим, что в работе экспериментально обнаружена генерация магнитоиндуцированной третьей оптической гармоники в наногранулярных магнитных пленках, обладающих гигантским магнитосопротивлением. В пленках  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$  магнитный эффект в интенсивности третьей гармоники имеет тот же порядок величины или даже несколько превосходит наблюдавшийся ранее аналогичный эффект для магнитоиндуцированной ВГ. Показано, что аналогично магнитоиндуцированной ВГ наблюдается корреляция эффекта ГМС и нелинейного магнитооптического эффекта Керра в третьей гармонике, проявляющаяся в одинаковой зависимости этих эффек-

тов от композиционного состава пленок и достижении максимума эффектов при одинаковой концентрации магнитной компоненты в наногранулярных пленках.

Работа выполнена при поддержке президентского гранта “Ведущие научные школы России” # НШ-1604.2003.2, “Гранта Москвы – 2003” и в рамках комплексной программы фундаментальных исследований “Наносистемы, наноматериалы и нанотехнологии” НАН Украины по теме “Физика магнитных наноструктур с гигантским магниторезистивным эффектом”.

- 
1. S. S. P. Parkin, R. Bhadra, and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **66** 2152 (1991).
  2. Yu. G. Pogorelov, G. N. Kakazey, J. B. Sousa et al., *Phys. Rev.* **B60**, 12200 (1999).
  3. C. J. O'Connor, V. O. Golub, A. Ya. Vovk et al., *IEEE Transactions and Magnetism* **38**, 647 (2001).
  4. M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert et al., *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
  5. H. A. Wierenga, W. de Jong, M. W. J. Prins et al., *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1462 (1995).
  6. A. E. Berkowitz, J. R. Mitchell, M. J. Carey et al., *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3745 (1992).
  7. W. Zhang and R. Yang, *Phys. Lett.* **A255**, 343 (1999).
  8. И. П. Шен, *Принципы нелинейной оптики*, М.: Наука, 1989; О. А. Аксипетров, *Colloids and Surfaces* **A202**, 165 (2002).
  9. J. Reif, J. C. Zink, C.-M. Schneider, and J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2878 (1991); K. H. Bennemann, *J. of Magnetism and Magn. Mater.* **200**, 679 (1999).
  10. Т. В. Мурзина, Т. В. Мисуряев, А. Ф. Краветс et al., *Surf. Sci.* **482-485**, 1101 (2001).
  11. О. А. Аксипетров, I. M. Baranova, and Yu. A. П'inskii, *ZhETF* **91**, 287 (1986) [*Sov. Phys. JETP* **64**, 167 (1986)].
  12. Т. В. Мурзина, А. А. Никulin, О. А. Аксипетров et al., *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1309 (2001).
  13. R. R. Birss, *Symmetry and Magnetism*, North Holland Ed., 1964.
  14. Ru-Pin Pan, H. D. Wei, and Y. R. Shen, *Phys. Rev.* **B39**, 1229 (1989).
  15. R. Stolle, G. Marowsky, E. Schwarzberg, and G. Berkovic, *Appl. Phys.* **B63**, 491 (1996).
  16. E. Poliakov, V. M. Shalaev, V. Shubin, and V. A. Markel, *Phys. Rev.* **B60**, 10739 (1999).