

## МАГНЕТИЗМ ПЛАНАРНЫХ НАНОСТРУКТУР КОБАЛЬТ–ЗОЛОТО НА ПОВЕРХНОСТИ КРЕМНИЯ

*Т. В. Мурзина<sup>a\*</sup>, А. В. Шебаршин<sup>a</sup>, И. А. Колмычек<sup>a</sup>, Е. А. Ганьшина<sup>a\*\*</sup>,  
О. А. Акципетров<sup>a</sup>, А. И. Стогний<sup>b</sup>, Н. Н. Новицкий<sup>b</sup>, А. Сташкевич<sup>c</sup>*

<sup>a</sup> *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119992, Москва, Россия*

<sup>b</sup> *ГО НПЦ по материаловедению Национальной академии наук Беларуси  
220072, Минск, Беларусь*

<sup>c</sup> *LPMTM, Institut Galilée, University Paris 13, Paris, France*

Поступила в редакцию 27 мая 2008 г.

Исследованы структурные и магнитные свойства нанослоя кобальта, помещенного между кремниевой подложкой и защитным слоем золота. Показано, что для массовой толщины слоя кобальта 1–2 нм наблюдается образование nanoостровковой структуры. Для этого диапазона значений обнаружено наличие локального максимума магнитооптического эффекта Керра, а также усиление нелинейно-оптического и магнитного нелинейно-оптического отклика на частоте второй гармоники. Возможным механизмом такого усиления является возбуждение локальных поверхностных плазмонов и возрастание локальных полей на частотах зондирующего излучения и второй гармоники в металлических nanoостровках. Максимальные значения поверхностно-чувствительного нелинейного магнитооптического эффекта Керра на частоте второй гармоники наблюдаются при значениях толщины слоя кобальта около 2 нм, что соответствует характерному масштабу формирования намагниченности приповерхностного слоя кобальта.

PACS: 78.20.Ls, 78.67.-n, 42.65.Ky

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Магнитные свойства наноструктур являются объектом пристального внимания исследователей в течение последнего времени. Новые технологические возможности, появившиеся относительно недавно, позволяют изготавливать структуры с размерами настолько малыми, что в них выступают на первый план эффекты, обусловленные наноразмерностью. К числу таких эффектов в магнитных наноструктурах можно отнести гигантское магнитосопротивление, осцилляции спин-магнитного взаимодействия в слоистых гетероструктурах, поверхностные магнитные и плазмонные эффекты и др. [1–3]. Изучение таких явлений в различных типах наноструктур, а также развитие новых чув-

ствительных методов для их диагностики являются актуальными задачами.

Применение нелинейно-оптических методов, обладающих высокой чувствительностью к магнитным, симметричным, структурным и электронным свойствам поверхностей и наночастиц, позволяет исследовать свойства как поверхностей пленок, так и внутренних границ раздела [4]. Это принципиально важно для магнитных нанокмозитов в силу возможной специфики спин-орбитального и обменного взаимодействий в приповерхностной области магнитных наночастиц. Среди нелинейно-оптических методов можно особо выделить метод генерации второй оптической гармоники (ВГ). Применимость метода генерации ВГ для изучения магнитных свойств различных сред основана на появлении в средах с намагниченностью дополнительных магнитоиндуцированных компонент нелинейной восприимчивости, величина которых пропорциональна намагни-

\*E-mail: murzina@mail.ru

\*\*E-mail: eagan@magn.ru

ченности среды и определяет величину нелинейно-оптических магнитных эффектов Керра и Фарадея [5, 6]. При этом в силу специфики генерации второй гармоники нелинейные источники ВГ, как немагнитные, так и магнитоиндуцированные, локализованы в областях с нарушенным центром инверсии, т. е. в случае металлов — на поверхности и внутренних границах раздела структур. Поэтому изучение особенностей генерации магнитоиндуцированной ВГ и линейного магнитооптического отклика могут быть использованы для сравнительного анализа магнитных свойств «объема» и поверхностей магнетиков, а также границ раздела между магнетиком и немагнитным материалом.

К настоящему времени существует ряд работ, посвященных исследованию генерации магнитоиндуцированной ВГ в мультислойных магнитных структурах. Было показано, что в нанослойной структуре Au-Co-Au наблюдаются большие величины магнитного нелинейно-оптического эффекта, обусловленные намагниченностью границ раздела [7]. В случае магнитной мультислойной структуры Cu-Co-Cu(001) высокая чувствительность метода генерации ВГ к свойствам поверхностей и границ раздела позволила выявить наличие поверхностных состояний границы раздела кобальт-медь, проявляющихся в выраженной немонотонной зависимости магнитного контраста интенсивности ВГ от толщины слоя кобальта в диапазоне 1–20 нм [8]. Однако последовательного изучения магнитных и магнитооптических свойств структуры типа полупроводник-ферромагнитный металл-немагнитный металл до сих пор проведено не было.

Магнитные мультислойные структуры на поверхности полупроводника привлекают внимание в настоящее время, поскольку являются перспективными материалами спинтроники, сочетая в себе возможности магнитного управления электронным транспортом и интегрируемости в современную полупроводниковую микроэлектронику [9, 10]. С точки зрения фундаментальных исследований, интерес представляет изучение магнитных свойств границ раздела ферромагнитный металл-полупроводник, в том числе, индуцированной намагниченности полупроводника, граничащего с ферромагнитным металлом. Поэтому исследование магнитных, транспортных и магнитооптических свойств таких структур представляет собой важную задачу. С методологической точки зрения, актуальной является проблема разработки высокочувствительных методов диагностики структурных и магнитных свойств ферромагнитных наноструктур.

Данная работа посвящена изучению магнитных свойств нанослоев кобальта различной толщины, в структуре Au-Co-Si, методами линейной и нелинейной магнитооптики. Изготовленные структуры охарактеризованы различными методами и показано, что в области массовой толщины кобальта равной 1–2 нм формируется островковоподобная структура. Зависимость нелинейного магнитооптического эффекта на частоте ВГ достигает максимальных значений при существенно меньшей толщине магнитного слоя, чем в случае линейного магнитооптического эффекта, что свидетельствует о различных магнитных свойствах границ раздела и объема слоистой структуры. При значениях толщины слоя кобальта, соответствующих nanoостровковой структуре, обнаружено возрастание как магнитооптического эффекта Керра, так и нелинейного магнитооптического эффекта Керра, что может быть обусловлено резонансным возбуждением локальных поверхностных плазмонов в металлических nanoостровках.

Структура работы такова: вначале приведено краткое описание процесса генерации второй оптической гармоники в магнитных средах и наноструктурах. В оригинальной части работы приведены результаты по изготовлению магнитных нанослойных структур Au-Co на поверхности кремния, диагностики их структурных, проводящих и статических магнитных свойств, затем изложены результаты магнитооптических и нелинейных магнитооптических исследований.

## 2. НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКАЯ МЕТОДИКА

### 2.1. Генерация второй оптической гармоники в магнитных металлических структурах

Метод генерации ВГ эффективно используется при исследовании свойств поверхностей и внутренних границ раздела центросимметричных сред, таких как металлы и некоторые полупроводники (в том числе кремний, германий). Особенностью данного метода является высокая чувствительность процесса генерации ВГ к электронным, структурным, электрическим, магнитным и др. свойствам поверхности, обусловленная симметричным запретом на существование квадратичной восприимчивости в объеме таких сред в электродипольном приближении [4]. Поэтому генерация ВГ разрешена только в областях с нарушенной симметрией, в первую очередь, на поверхности полубесконечной центросимметричной среды.

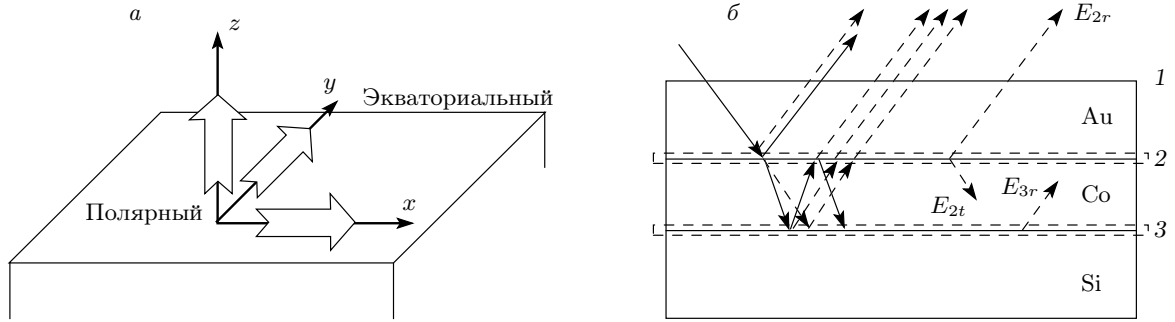


Рис. 1. а) Схематическое изображение геометрии эксперимента по генерации ВГ, б) ход лучей в структуре

Наличие намагниченности не приводит к снятию центра инверсии среды, однако в областях с нарушенной центросимметричностью возникают новые магнитоиндуцированные компоненты нелинейно-оптического отклика, изменяющие знак при смене направления приложенного магнитного поля (намагниченности среды,  $\mathbf{M}$ ). Согласно устоявшейся терминологии, магнитоиндуцированные компоненты отклика называют нечетными (*odd*), поскольку при смене направления приложенного магнитного поля они изменяют знак. Таким образом, в случае намагниченной среды интенсивность ВГ в электродипольном приближении можно представить в виде

$$I_{2\omega}(\mathbf{M}) \sim |\mathbf{E}_{2\omega}^{even} \pm \mathbf{E}_{2\omega}^{odd}(\pm\mathbf{M})|^2 = |\mathbf{E}_{2\omega}^{even}|^2 \pm 2|\mathbf{E}_{2\omega}^{even}||\mathbf{E}_{2\omega}^{odd}|\cos\varphi + |\mathbf{E}_{2\omega}^{odd}(\pm\mathbf{M})|^2, \quad (1)$$

где  $\mathbf{E}_{2\omega}^{even}$ ,  $\mathbf{E}_{2\omega}^{odd}$  — немагнитная (так называемая кристаллографическая) и магнитоиндуцированная составляющие электрического поля на частоте ВГ,  $\varphi$  — фазовый сдвиг между ними, знаки «+» и «-» обозначают противоположные направления намагниченности образца.

Поле на частоте ВГ (в электродипольном приближении) пропорционально нелинейной поляризации на частоте ВГ, которая, в свою очередь, определяется тензором дипольной восприимчивости второго порядка  $\hat{\chi}$ :

$$\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{M}) \sim \mathbf{P}_{2\omega}(\mathbf{M}) = \hat{\chi}(\mathbf{M})\mathbf{E}_{\omega}\mathbf{E}_{\omega},$$

где  $\mathbf{E}_{\omega}$  — напряженность электрического поля накачки. В случае магнетиков квадратичную восприимчивость можно представить в виде [11]

$$\hat{\chi}(\mathbf{M}) = \hat{\chi}^{even} \pm \hat{\chi}^{odd}e^{i\varphi}(\pm\mathbf{M}),$$

где  $\hat{\chi}^{even}$  и  $\hat{\chi}^{odd}(\mathbf{M})$  — соответственно кристаллографическая (немагнитная) и магнитоиндуцированная

составляющие квадратичной восприимчивости. Отметим, что симметрия тензора  $\hat{\chi}^{odd}(\mathbf{M})$  отлична от симметрии  $\hat{\chi}^{even}$ , а величина компонент  $\hat{\chi}^{odd}(\mathbf{M})$  прямо пропорциональна намагниченности среды  $\mathbf{M}$ . Таким образом, появляется возможность диагностики магнитного состояния структуры по свойствам ее нелинейно-оптического отклика.

Симметрия тензора нелинейной магнитной восприимчивости определяется ориентацией внешнего магнитного поля (и, соответственно,  $\mathbf{M}$  в случае ферромагнетиков) в лабораторной системе координат и системе координат образца. Если ввести систему координат таким образом, что поверхности образца соответствует плоскость  $xy$ , нормали к поверхности — ось  $z$ , а  $zx$  соответствует плоскости падения (рис. 1а), то согласно принятой классификации, можно различить следующие виды магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра: полярный, при  $\mathbf{M} \parallel \mathbf{z}$ , меридиональный,  $\mathbf{M} \parallel \mathbf{x}$ , и экваториальный,  $\mathbf{M} \parallel \mathbf{y}$ . Соответствующие компоненты магнитоиндуцированной квадратичной восприимчивости для простейшего случая поверхности изотропной среды, возникающие для соответствующей ориентации намагниченности в среде, представлены в таблице. Во втором столбце приведены немагнитные (кристаллографические) компоненты квадратичной восприимчивости, в третьем и четвертом — магнитоиндуцированные компоненты, возникающие на поверхности изотропной среды в случае меридионального и экваториального эффекта Керра.

Из таблицы следует, что в случае меридионального эффекта Керра должен наблюдаться магнитоиндуцированный поворот плоскости поляризации волны ВГ (относительно поляризации волны накачки), обусловленный появлением магнитоиндуцированной  $s$ -составляющей, отсутствующей для изотропной среды. В этом случае магнитоиндуцирован-

Таблица. Компоненты квадратичной восприимчивости (не зависящие от магнитного поля —  $\chi^{even}(2\omega)$  и нечетные по  $M$  —  $\chi^{odd}(2\omega)$ ), ответственные за генерацию ВГ для различных комбинаций излучения накачки и ВГ

Комбинации поляризацій	$\chi^{even}(2\omega)$	$\chi^{odd}(2\omega)$	
		$M \parallel x$	$M \parallel y$
$p-\omega, p-2\omega$	$\chi_{zzz}, \chi_{zxx}, \chi_{xxz}$	0	$\chi_{xxx}, \chi_{xzz}, \chi_{zzx}$
$p-\omega, s-2\omega$	0	$\chi_{yxx}, \chi_{yzz}$	0
$s-\omega, p-2\omega$	$\chi_{zyy}$	0	$\chi_{xyy}$
$s-\omega, s-2\omega$	0	$\chi_{yyy}$	0

ный поворот плоскости поляризации является нечетной функцией намагниченности и определяется отношением соответствующих компонент поля волны ВГ:

$$E^s / E^p = \hat{\chi}^{odd}(M) / \hat{\chi}^{even}.$$

Для экваториального эффекта Керра возможно изменение интенсивности  $p$ -поляризованной волны ВГ при смене направления приложенного магнитного поля за счет появления нечетных по  $M$  компонент квадратичной восприимчивости, которые так же, как и компоненты немагнитной восприимчивости, дают вклад в  $p$ -поляризованную ВГ (четвертый столбец в таблице). Изменения интенсивности ВГ будут наблюдаться в случае, если фазовый сдвиг между немагнитной и магнитоиндуцированной составляющими поля ВГ, определяемый соответствующими компонентами квадратичной восприимчивости, отличен от  $\pi/2$ , что реализуется в случае поглощающих сред [11]. Мерой величины экваториального эффекта Керра служит магнитный контраст на частоте ВГ:

$$\rho_{2\omega} = \frac{I_{2\omega}(+M) - I_{2\omega}(-M)}{I_{2\omega}(+M) + I_{2\omega}(-M)} \sim \frac{2\hat{\chi}^{odd}}{\hat{\chi}^{even}} \cos \varphi, \quad (2)$$

где  $I_{2\omega}(+M)$  и  $I_{2\omega}(-M)$  — интенсивность ВГ, измеренная для противоположных направлений намагниченности (приложенного магнитного поля). Таким образом, из измерений магнитного контраста ВГ возможно оценить относительную величину магнитоиндуцированной компоненты  $\hat{\chi}^{odd}$ , если известен фазовый сдвиг  $\varphi$ . Его величина может быть измерена методом магнитной интерферометрии [12].

В свою очередь, величина  $\hat{\chi}^{odd}$  определяется магнитными свойствами среды, участвующей в генерации ВГ, и поэтому может использоваться для диагностики магнитных свойств тонких поверхностных и интерфейсных областей, в которых  $\hat{\chi}^{odd}$  отлична от нуля. В случае металлов характерные значения толщины этих областей могут составлять несколько

постоянных решетки кристалла, т. е. доли нанометра.

## 2.2. Плазмонный механизм усиления второй гармоники в металлических наноструктурах

Эффективность генерации ВГ может быть значительно усилена при возбуждении локальных поверхностных плазмонов, т. е. колебаний электронной плазмы в металлических структурах с ограниченной геометрией в наночастицах или нанополостях. Именно возбуждение локальных поверхностных плазмонов и соответствующее возрастание факторов локального поля на частотах накачки и ВГ приводят к таким явлениям, как гигантское усиление ВГ и комбинационного рассеяния света вблизи шероховатой поверхности металла [13] и в металлических наночастицах [14, 15], аномальному возрастанию коэффициента пропускания [16] и эффективности генерации ВГ в нано-перфорированных металлических пленках [17].

В то же время, вопрос о роли поверхностных плазмонов в усилении магнитооптического отклика магнитных наноструктур до настоящего времени остается открытым. Существуют теоретические [18, 19] и, насколько нам известно, одна экспериментальная [20] работа, в которых рассмотрено возрастание магнитооптического отклика среды при возбуждении локальных поверхностных плазмонов в наноструктурах.

## 3. ЭКСПЕРИМЕНТ

### 3.1. Методы нанесения тонких пленок Co–Au

Образцы представляли собой набор тонких пленок кобальта (толщиной от 0.8 нм до 15 нм), осажденных на подложку кремния кристаллографической ориентации (100) и покрытых слоем золота тол-

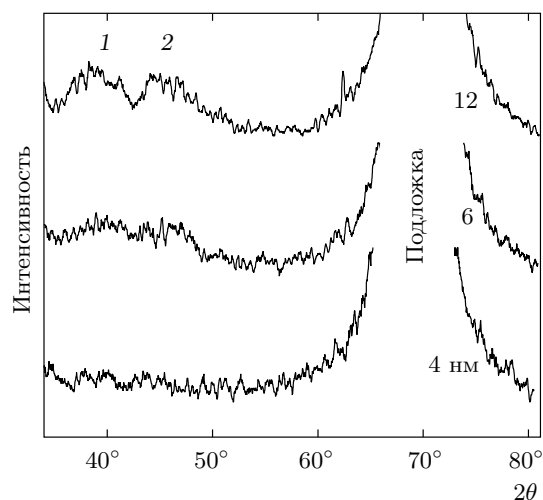


Рис. 2. Рентгенограммы пленок кобальта толщиной 4, 6, 12 нм

щиной 0.9 нм. Получение пленочных структур проводилось на установке ионно-лучевого распыления, описание которой приведено в работе [21]. Распыление мишени проводилось пучком ионов аргона с энергией 1.2 кэВ, плотность тока пучка составляла 0.35 мА/см<sup>2</sup>. В качестве мишени использовался кобальт, чистота которого составляла не ниже 99.99%. Предельное давление в установке было менее 10<sup>-3</sup> Па. Рабочее давление во время осаждения пленки не превышало 10<sup>-2</sup> Па. Предварительная очистка поверхности мишени ионным распылением составляла не менее 100 мин при указанных режимах процесса. Массовая скорость осаждения определялась из зависимости толщины пленки от времени осаждения. Большие по толщине пленки с объемноподобными свойствами для калибровки измерялись при помощи микроинтерферометра Линника МИИ-4. Скорость осаждения пленок кобальта составила 0.5 ± 0.1 Å/с. После этого требуемая наноразмерная толщина пленок контролировалась временем осаждения и стабильностью параметров осаждения.

Пленки кобальта после окончания процесса осаждения для защиты от окисления покрывались пленкой золота толщиной 0.9 нм в непрерывном вакуумном цикле. Анализ структуры полученных образцов проводился на рентгеновском дифрактометре с использованием K<sub>α</sub>-излучения Cu (рис. 2). По мере роста пленки кобальта наблюдалось увеличение интенсивности двух уширенных пиков, (обозначенных 1 и 2), относящихся соответственно к направлениям (100) и (002) гексагональной структуры

кобальта пространственной группы  $P6_3/mmc$ . Из анализа рентгенограмм, полученных для пленок с разной толщиной кобальта  $d_{Co}$ , следует, что объемноподобная кристаллическая структура формируется при  $d_{Co} > 6$  нм. При прерывании процесса роста пленки кобальта после достижения толщины 12 нм уже наблюдаются сингонии, характерные для гексагональной структуры Co. Это находится в корреляции с данными других методов измерения по началу формирования пленки со свойствами, близкими к справочным данным для кобальта [22].

### 3.2. Методика нелинейных магнитооптических измерений

В качестве источника оптического излучения накачки использовался импульсный YAG : Nd<sup>3+</sup>-лазер с длиной волны 1064 нм, длительностью импульса 15 нс и частотой их следования 25 Гц. Излучение накачки направлялось на образец под углом 45°, отраженное в зеркальном направлении излучение на частоте ВГ выделялось системой фильтров, при необходимости — с помощью монохроматора МДР24, и регистрировалось ФЭУ-79 или Hamamatsu R4220P, работавшими в режиме счета фотонов, и стробируемой электронной системой регистрации. Магнитное поле напряженностью 2 кГс, создаваемое с помощью двух постоянных FeNdВ-магнитов, прикладывалось в плоскости поверхности образца, причем была реализована возможность вращения приложенного поля вокруг образца.

Для снижения влияния флуктуаций мощности лазерного излучения на регистрируемый сигнал ВГ от образца использовался дополнительный канал сравнения, в который с помощью светоделительной пластины отводилось около 10% мощности излучения накачки. Источником излучения ВГ в сигнале сравнения являлся нелинейный кристалл метабората бария, при этом система регистрации ВГ была идентичной используемой в сигнальном канале. Регистрируемой в эксперименте величиной являлась интенсивность ВГ сигнального канала, нормированная на интенсивность ВГ в канале сравнения, что позволяло уменьшить влияние флуктуаций пиковой мощности и формы импульса на интенсивность регистрируемого сигнала.

### 3.3. Исследование структуры, магнитных и проводящих свойств нанослоев Au–Co–Si

Топология поверхности образцов анализировалась при помощи атомно-силового микроскопа Фем-

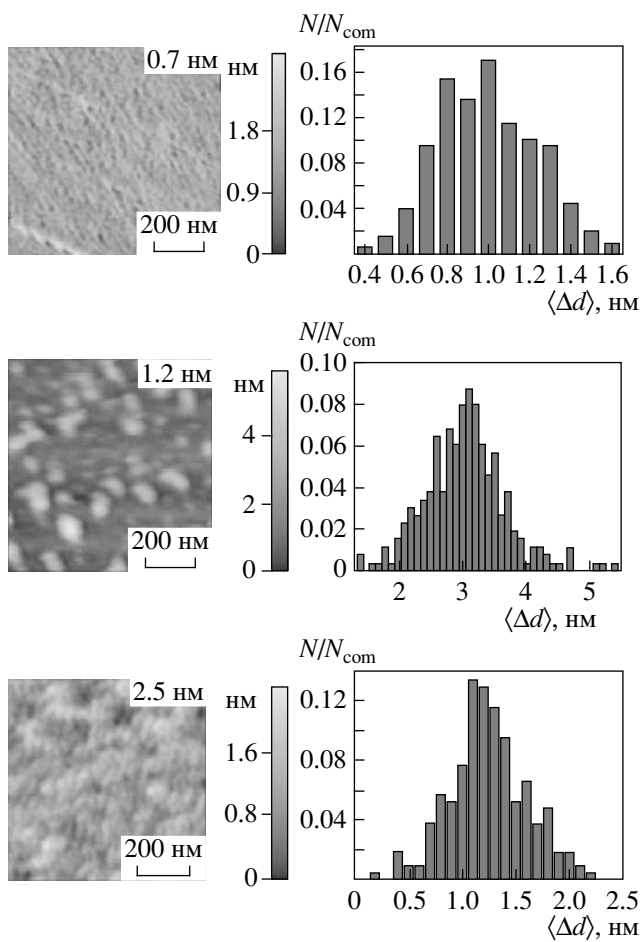


Рис. 3. Изображения структур Au-Co-Si, полученные с помощью атомно-силового микроскопа, для толщины слоя кобальта 0.7, 1.2, 2.5 нм и гистограмма размеров неоднородностей поверхности

тоскан-001 (Центр перспективных технологий МГУ) с полем сканирования до  $5 \times 5$  мкм<sup>2</sup> с использованием кремниевых кантилеверов CSC12 (продукция фирмы MicroMash). Изображения поверхности образцов с толщиной слоя кобальта  $d_{Co} = 0.7, 1.2, 5$  нм представлены на рис. 3. Микроскопические исследования показывают, что практически для всего диапазона значений  $d_{Co}$  поверхность структуры является относительно гладкой и однородной, стандартное среднеквадратичное отклонение в направлении нормали к поверхности составляет около 0.3 нм при изменении толщины слоя кобальта в нанесенной структуре кобальт-золото от 1.5 нм до 17 нм. Однако для диапазона толщины слоя кобальта  $d_{Co} = 1-1.5$  нм наблюдается образование наноструктурной структуры (рис. 3б), сопровождающееся возрастанием структурной неоднородности как в плоскости поверхно-

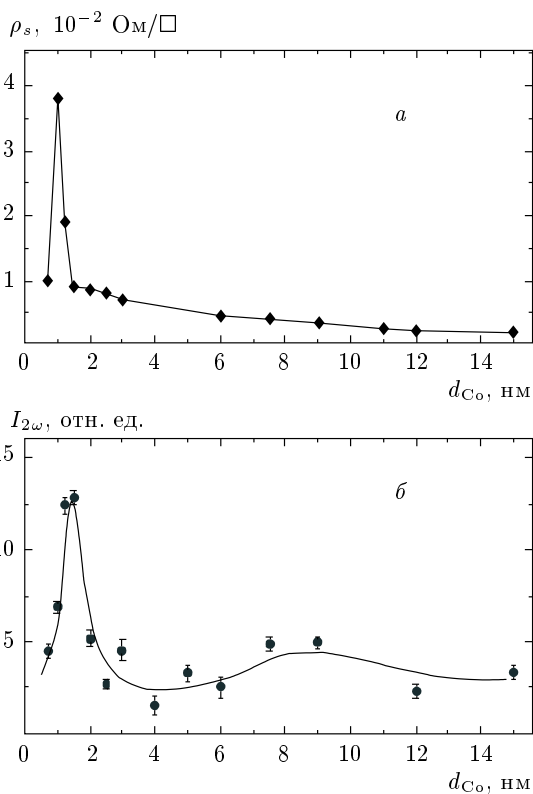


Рис. 4. Зависимость поверхностного сопротивления (а) и интенсивности ВГ (б) от толщины слоя кобальта в структуре Au-Co-Si

сти, так и в перпендикулярном ей направлении. Средние размеры островков составляют 60 нм при их высоте около 3 нм. Результаты предыдущих исследований по ионно-лучевому осаждению нанослоев золота на поверхности с плоскими и неоднородными рельефами позволяют считать, что в рассматриваемых бислойных структурах золото равномерно и конформно покрывает слой кобальта [23]. Таким образом, на представленных изображениях изменения в топологии поверхности обусловлены, в первую очередь, изменениями топологии слоя кобальта при изменении его средней толщины в бислойной структуре.

Для структур Au-Co-Si была измерена зависимость поверхностного сопротивления  $\rho_s$  от величины  $d_{Co}$  (рис. 4а). Измерения проводились стандартным четырехзондовым методом с помощью прибора ИУС-3 для участка поверхности квадратной формы. Характерной особенностью зависимости  $\rho_s(d_{Co})$  является резкое возрастание  $\rho_s$  в области  $d_{Co} \approx 1-1.5$  нм, т. е. для пленок с островковой структурой. При последующем увеличении  $d_{Co}$  на-

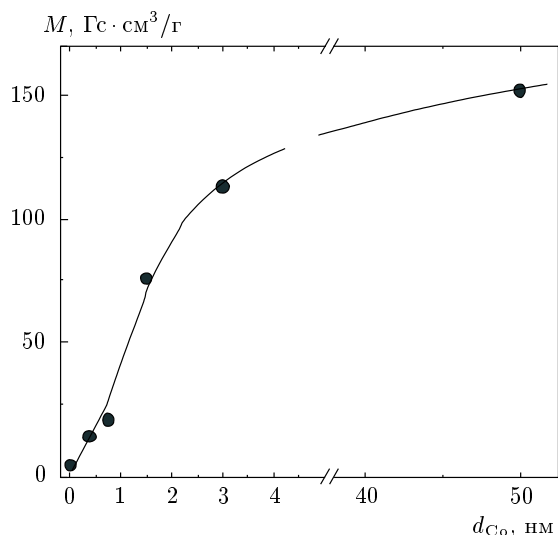


Рис. 5. Зависимость удельной намагниченности от толщины слоя кобальта в структурах Au-Co-Si

блюдается уменьшение  $\rho_s$  с последующим насыщением при значениях, свойственных массивному образцу кобальта.

Зависимость удельной намагниченности от толщины слоя Co в структурах Au-Co-Si представлена на рис. 5. Измерения проводились пондеромоторным методом в магнитном поле 0.86 Тл, приложенном в плоскости образца. Удельная намагниченность пленок заметно возрастает по мере увеличения их толщины и достигает стационарных значений при  $d_{Co} > 6-8$  нм. На начальной стадии прерывания процесса осаждения удельная намагниченность отличается в 6-8 раз от значения, соответствующего массивному состоянию. Таким образом, анализ результатов, представленных на рис. 2-5, свидетельствует о существенном отклонении характеристик пленок кобальта наноразмерной толщины, полученных прерыванием процесса осаждения на самой начальной стадии, от соответствующих значений для массивного аналога.

### 3.4. Магнитооптический эффект Керра в структуре Au-Co-Si

Магнитооптические свойства структуры Au-Co-Si были исследованы с помощью магнитооптического эффекта Керра в экваториальной геометрии. Экваториальный эффект Керра исследовался в энергетическом интервале  $0.5 \text{ эВ} < E < 4.2 \text{ эВ}$  при комнатной температуре в магнитном поле

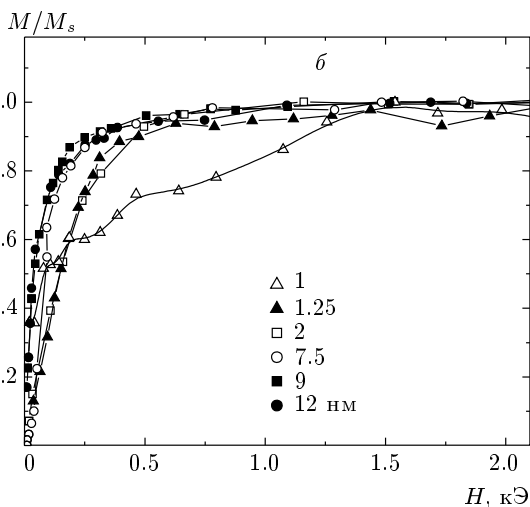
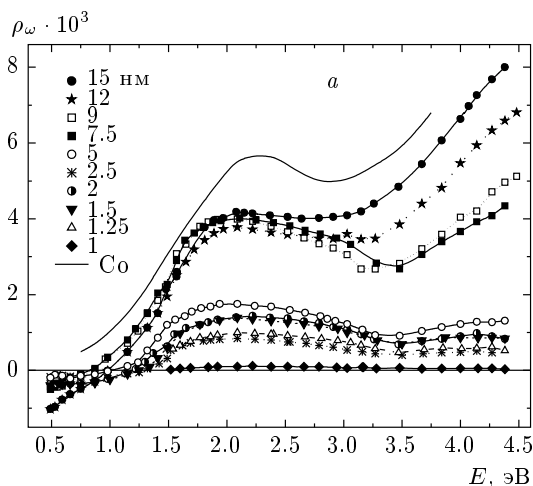


Рис. 6. а) Спектральные зависимости экваториального эффекта Керра для пленок Co-Au с разной толщиной слоя кобальта (точки) и толстой пленки кобальта (сплошная линия), б) зависимости относительной намагниченности  $M/M_s$  от величины приложенного магнитного поля, полученные из измерений полевых зависимостей эффекта Керра

до 3.0 кЭ, приложенном в плоскости пленки. Экспериментально измерялось относительное изменение интенсивности отраженного от образца  $p$ -поляризованного света,

$$\rho_\omega = [I(H) - I(0)] / I(0),$$

где  $I(H)$  и  $I(0)$  — интенсивности отраженного света при наличии и отсутствии магнитного поля. Подробно методика измерения  $\rho_\omega$  описана в работе [24].

На рис. 6а приведены спектры экваториального эффекта Керра структур Au-Co-Si, демонстри-

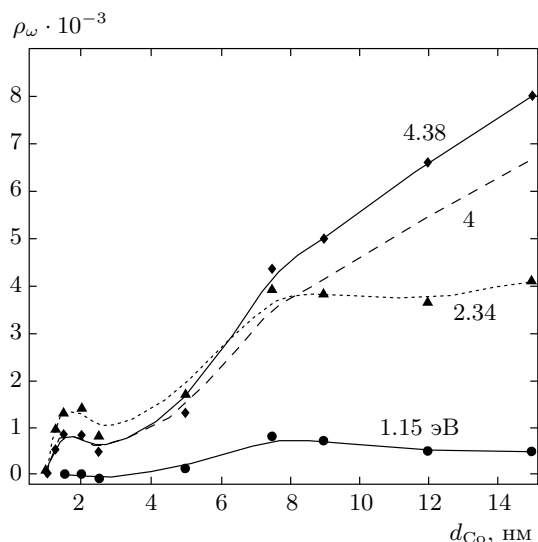


Рис. 7. Зависимость магнитного контраста экваториального эффекта Керра от толщины слоя кобальта для разных энергий зондирующего излучения

рующие сильную зависимость спектров от толщины слоя Co. Можно отметить следующие основные особенности спектров исследованных образцов. Во-первых, для всего диапазона толщины слоя кобальта наблюдается максимум  $\rho_\omega$  в окрестности энергии 2 эВ. Такое поведение спектров типично для различных типов структур рентгеноаморфного, поли- и микрокристаллического кобальта [25, 26]. Во-вторых, для структур с  $d_{Co} > 6$  нм наблюдается рост величины  $\rho_\omega$  в области спектра 3.5–4.5 эВ, тогда как при меньшей толщине слоя кобальта такой рост выражен слабо. С увеличением толщины слоя кобальта в структуре вид спектров магнитооптического эффекта Керра становится подобен спектру для толстой кобальтовой пленки [27]. Максимальная амплитуда эффекта во всей области спектра наблюдалась для образца с толщиной кобальта 15 нм.

На рис. 6б представлены зависимости относительной намагниченности  $M/M_s$  (где  $M_s$  — намагниченность насыщения образца) от величины магнитного поля, приложенного в плоскости пленки, полученные из измерений полевых зависимостей эффекта Керра. Из приведенных кривых следует, что поле насыщения растет с уменьшением толщины слоя кобальта. Нанослой структуры Au–Co–Si с  $d_{Co} > 6$  нм намагничиваются в поле порядка 500 Э, для образцов толщиной 1.25–2 нм насыщение достигается в поле около 900 Э, а образец с  $d_{Co} \approx 1$  нм достигает насыщения только в поле 1500 Э.

Зависимости эффекта Керра от массовой толщины слоя кобальта в структуре Au–Co–Si, измеренные в магнитном поле 2.5 кЭ для нескольких длин волн, приведены на рис. 7. Видно, что зависимость эффекта Керра от толщины слоя кобальта немонотонна и изменяется с длиной волны света. Для всех значений длин волн наблюдается локальный максимум в области  $d_{Co} = 1$ –2 нм, сопровождающийся ростом величины эффекта до толщин  $d_{Co} \approx 6$ –8 нм. Видно, что зависимость от толщины немонотонна и изменяется с длиной волны света. Для всех длин волн наблюдаются локальный максимум в области 1.5–2 нм и рост величины эффекта до значений  $d_{Co} \approx 7$ –8 нм. В области  $d_{Co} > 7$  нм для энергий  $h\nu > 2.5$  эВ наблюдается практически линейный рост, а в области энергий  $1 \text{ эВ} < h\nu < 2.5 \text{ эВ}$  эффект слабо зависит от толщины.

### 3.5. Генерация немагнитной второй гармоники в структуре Au–Co–Si

Для анализа процесса генерации ВГ в структурах Au–Co–Si были исследованы анизотропия, поляризация и направленность излучения ВГ. Для всех образцов с массовой толщиной слоя кобальта в диапазоне  $d_{Co} = 0.7$ –15 нм интенсивность ВГ, отраженной от их поверхности, была изотропной для  $p - \omega$ ,  $p - 2\omega$  комбинации поляризаций соответственно излучения накачки и ВГ. Интенсивность  $s$ -поляризованной составляющей ВГ оказалась существенно (примерно на 2 порядка величины) меньше  $p$ -поляризованной компоненты ВГ и изотропной в пределах ошибки измерений. Практически полное отсутствие  $s$ -поляризованной составляющей ВГ (так называемый  $s$ -запрет) отражает преимущественно когерентный характер генерации ВГ, свойственный гладким поверхностям [28]. Измерения индикатрис рассеяния ВГ показали, что излучение ВГ является зеркальным для всех исследованных образцов в пределах ошибки измерений, что также отражает когерентность квадратичного нелинейно-оптического отклика [29]. Таким образом, нелинейно-оптический отклик структур Au–Co–Si можно описывать тензором квадратичной восприимчивости для изотропной поверхности (таблица).

На рис. 4б приведена зависимость интенсивности ВГ от массовой толщины слоя кобальта в структуре Au–Co–Si,  $I_{2\omega}(d_{Co})$ . Основной особенностью этой зависимости является наличие резкого максимума при толщине  $d_{Co} = 1$ –2 нм, положение которого соответ-



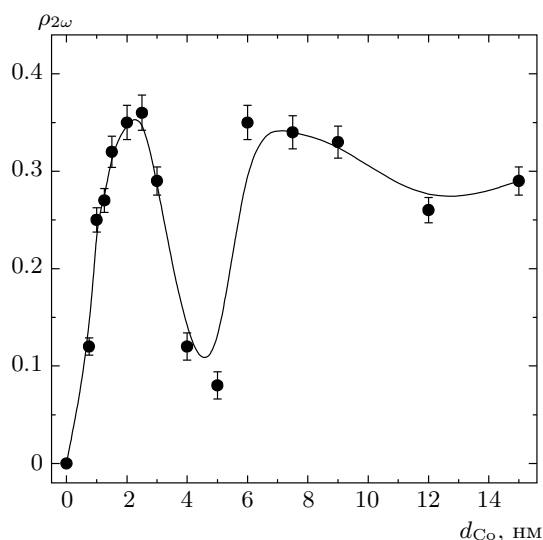


Рис. 8. Зависимость магнитного контраста нелинейного магнитооптического эффекта Керра от толщины слоя кобальта

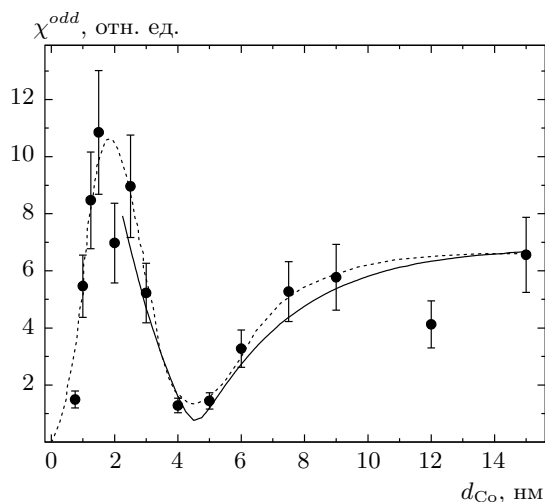


Рис. 9. Зависимость эффективной магнитоиндуцированной восприимчивости структуры Au-Co-Si от толщины слоя кобальта. Точки — эксперимент, штриховая линия проведена «на глаз», сплошная линия — результат расчета

ствует пику зависимости поверхностного сопротивления  $\rho_S(d_{Co})$  (рис. 4a) и соответствует формированию островковой структуры кобальта (п. 3.2).

### 3.6. Магнитный нелинейно-оптический эффект Керра в структуре Au-Co-Si

Нелинейно-оптические магнитные свойства структур Au-Co-Si были исследованы методом нелинейно-оптического магнитного эффекта Керра для экваториальной геометрии, при этом измеряемой величиной являлся магнитный контраст интенсивности ВГ, определяемый согласно формуле (2).

Зависимость магнитного контраста эффекта Керра от массовой толщины кобальта в структуре Au-Co-Si,  $\rho_{2\omega}(d_{Co})$ , представлена на рис. 8. Из сравнения результатов, приведенных на рис. 7, 8, видно, что зависимости магнитного контраста магнитооптического и нелинейно-оптического эффекта Керра от величины  $d_{Co}$  заметно различаются. Для нелинейного магнитооптического эффекта Керра наблюдается резкое возрастание магнитного контраста  $\rho_{2\omega}(d_{Co})$  в диапазоне толщин  $0 < d_{Co} < 3$  нм, при этом максимальная величина  $\rho_{2\omega}$  достигает 35%. Для массовой толщины кобальта  $d_{Co} = 4-5$  нм наблюдается минимум магнитного контраста

нелинейного эффекта Керра с  $\rho_{2\omega} \approx 10\%$ . При дальнейшем увеличении толщины слоя кобальта магнитный контраст эффекта практически не зависит от  $d_{Co}$ , его среднее значение составляет около 30%, что соответствует типичным значениям  $\rho_{2\omega}$  для гладкой поверхности ферромагнитных металлов.

Для определения из выражения (2) зависимости собственно магнитной составляющей нелинейной восприимчивости  $\chi^{odd}$ , пропорциональной намагниченности границ раздела в структуре Au-Co-Si, был измерен магнитоиндуцированный сдвиг фаз  $\varphi$  между магнитоиндуцированной и немагнитной составляющими. Величина  $\varphi$  для всех значений  $d_{Co}$  составила  $15^\circ-30^\circ$ . На основании измерений  $I_{2\omega}(d_{Co})$ ,  $\rho_{2\omega}(d_{Co})$  и  $\varphi(d_{Co})$  с помощью выражения (2) была рассчитана зависимость  $\chi^{odd}(d_{Co})$ , представленная на рис. 9. На рисунке видно, что наблюдается значительное (приблизительно в 2 раза) возрастание величины  $\chi^{odd}$  при массовой толщине слоя кобальта  $d_{Co} \approx 2$  нм, соответствующей области существования гранулярной структуры. Сплошной линией на рис. 9 показаны результаты расчетов зависимости эффективной магнитоиндуцированной восприимчивости  $\chi^{odd}(d_{Co})$  в структуре Au-Co-Si, демонстрирующие хорошее согласие с данными эксперимента. Более подробно параметры проведения расчетов будут описаны ниже в разд. 4.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Обратимся к анализу полученных результатов. Основной особенностью зависимостей величин поверхностного сопротивления  $I_{2\omega}$ ,  $\rho_{\omega}$ ,  $\rho_{2\omega}$  и  $\chi^{odd}$  от толщины слоя кобальта является наличие максимума для значений  $d_{Co}$ , соответствующих существованию гранулярной структуры. Соответствие зависимостей  $I_{2\omega}(d_{Co})$  и  $\rho(d_{Co})$  позволяет предположить, что именно островковость металлической структуры приводит к возрастанию этих величин. Возможным механизмом возрастания нелинейного и магнитооптического откликов для этого диапазона толщины кобальта является возбуждение локальных поверхностных плазмонов в наноструктурах кобальта и соответствующее возрастание факторов локального поля на частотах излучения накачки и/или ВГ. Аналогичное усиление нелинейно-оптического отклика за счет возбуждения локальных поверхностных плазмонов в островковых пленках серебра было получено ранее [30].

Когерентность отклика на частоте ВГ в области существования гранулярной структуры, проявляющаяся в поляризованности и зеркальности отраженного от структуры Au-Co-Si излучения ВГ, можно объяснить следующим образом. Форма гранул сильно «сплюснута», присутствуют большие практически плоские участки их поверхности, которые являются гладкими в смысле отсутствия нанометровой шероховатости. При угле падения излучения накачки на образец около  $45^\circ$ , как это было в наших экспериментах, основной вклад в нелинейный отклик дает компонента квадратичной поляризации  $\chi_{zzz}$ , где ось  $z$  соответствует нормали к поверхности. Для гранул одинаковой толщины и расположенных в одной плоскости оси  $z$  совпадают и нелинейные источники, определяемые  $\chi_{zzz}$ -компонентой, когерентны, аналогично когерентному отклику жидких кристаллов. Таким образом, и отклик на частоте ВГ также будет преимущественно когерентным, как это наблюдалось в эксперименте.

Для зависимости магнитооптического отклика структур Au-Co-Si от величины  $d_{Co}$  также наблюдается корреляция с данными структурных и магнитных измерений. Локальный максимум магнитооптического эффекта Керра и рост полей насыщения достигается как раз в области толщин  $d_{Co} = 1-2$  нм, где, согласно результатам, полученным на атомно-силовом микроскопе, структура слоя кобальта гранулярна. Данное усиление эффекта, по-видимому, аналогично усилению, наблюдаемому в районе перколяции для нанокomпозитов ферро-

магнетик-диэлектрик [31]. Исследование бислоиных структур Co-SiO<sub>2</sub> [32] показало, что перколяция в таких структурах наблюдается в области значений толщины кобальта порядка 2 нм. Относительно малая величина эффекта в этой области значений связана с малой величиной удельной намагниченности по сравнению с массивным кобальтом.

Значительный рост величины магнитооптического эффекта Керра в диапазоне  $d_{Co} = 2-7$  нм, наблюдаемый для всех энергий накачки, связан с ростом удельной намагниченности до величин, соответствующих массивному кобальту (п. 3.3). Действительно, как следует из измерений зависимости удельной намагниченности образцов от  $d_{Co}$ , формирование объемной намагниченности структуры происходит в области  $d_{Co} > 6$  нм. Изменение вида спектров магнитооптического эффекта Керра при  $d_{Co} > 7$  нм (рост при  $h\nu > 3.5$  эВ, рис. 6а) связано, по-видимому, с изменением структуры пленки кобальта при увеличении ее толщины, а именно — с ростом доли кристаллической гексагональной фазы, что следует также из приведенных выше результатов рентгеноструктурных исследований. Вид спектров эффекта Керра в области малых значений толщины ( $d_{Co} = 2-5$  нм) подобен спектру аморфных сплавов на основе кобальта, а при больших значениях  $d_{Co}$  — спектру кристаллического кобальта. В области  $d_{Co} = 5-15$  нм существуют обе фазы кобальта — неупорядоченная (аморфная) и кристаллическая — причем с ростом толщины пленки доля последней возрастает. В то же время известно [25], что для микрокристаллического кобальта наблюдается резкий рост магнитооптического отклика в области энергии свыше 3 эВ. Таким образом, увеличение относительной доли кристаллической фазы кобальта в структуре пленки с ростом ее толщины должно приводить ко все более выраженному росту магнитооптического эффекта Керра в высокоэнергетической области спектра, что и наблюдается в эксперименте (рис. 6а).

Различный вид зависимостей магнитного контраста магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра от массовой толщины кобальта в структуре можно объяснить, если учесть различную пространственную локализацию линейных и нелинейно-оптических источников, определяющих отклик на частотах накачки и ВГ. В случае магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра основной вклад в интенсивность ВГ, в том числе ее магнитоиндуцированной составляющей, обусловлен свойствами границ раздела между Co и Au или Co и Si. Поэтому возрастание как магнитного контраста ВГ, так и величины  $\chi^{odd}$  в области значений  $d_{Co} < 2$  нм опре-

деляется установлением стационарного значения намагниченности границ раздела или наноостровков кобальта, толщина которых соответствует характерной толщине приповерхностной области кобальта (порядка единиц нанометров) и намагниченность которой не меняется при дальнейшем увеличении  $d_{\text{Co}}$ .

Рассмотрим зависимость магнитного контраста интенсивности ВГ от массовой толщины кобальта в структуре  $\rho_{2\omega}(d_{\text{Co}})$  (рис. 8). Можно отметить две основные особенности: во-первых, резкое возрастание магнитного контраста интенсивности ВГ для  $d_{\text{Co}} < 1.5\text{--}2$  нм, во-вторых, наличие минимума для значений  $d_{\text{Co}} \approx 4\text{--}5$  нм. Первая особенность, как уже обсуждалось выше, обусловлена установлением стационарных значений намагниченности границ раздела между Co и Au или Co и Si, или же наноостровков кобальта. Минимум магнитного контраста обусловлен наличием локального минимума эффективной магнитоиндуцированной составляющей восприимчивости  $\chi^{odd}$ , существование которого наблюдается в эксперименте, подтверждается расчетами и обусловлено интерференционной природой отклика бислойной структуры Au–Co–Si на частоте ВГ.

Рассчитанная зависимость  $\chi^{odd}(d_{\text{Co}})$  для структуры Au–Co–Si при угле падения излучения накачки на образец  $45^\circ$  представлена на рис. 9. Источниками магнитоиндуцированной составляющей ВГ являются границы раздела, обозначенные цифрами 2 и 3 (рис. 1б), причем знак восприимчивости этих границ раздела различен, т. е. соответствующие вклады ВГ интерферируют деструктивно [7]. Поэтому важно учитывать факторы распространения на частотах накачки и ВГ, благодаря которым возникает отличный от  $\pi$  сдвиг фаз между источниками ВГ и появляется отличный от нуля сигнал ВГ. Квадрупольным вкладом в генерацию ВГ мы пренебрегли, поскольку, как было показано в работе [7], для металлических мультислойных структур он значительно меньше поверхностного дипольного. При расчете была вычислена напряженность электрического поля накачки на границах раздела 2 и 3 и соответствующие коэффициенты Френеля на длинах волн накачки и ВГ, при этом были использованы спектральные зависимости показателей преломления и поглощения пленок золота, кобальта и кремния [33]. Напряженность поля на частоте ВГ, отраженного от границы раздела 2, обозначена  $E_{2r}$ , прошедшей волны —  $E_{2t}$ . При расчете предполагалось, что амплитуда волны  $E_{2r}$  определяется интерференцией а) отраженной волны ВГ, возбужденной прошедшим через слой золота излучением накачки, б) волны ВГ, прошедшей через границу раздела 2 и отраженной

от границы раздела 3, в) волны ВГ, возбужденной на границе раздела 2 и отраженной от границы раздела 3. Аналогично рассчитывались напряженности поля волны ВГ  $E_{3t}$ , прошедшей в слой кобальта и отраженной от границы 3,  $E_{3r}$ .

Поскольку границы раздела 2 и 3, образованные различными материалами, по своим свойствам неэквивалентны, соответствующие компоненты квадратичной восприимчивости,  $\chi_2^{odd}$  и  $\chi_3^{odd}$ , также различны. Поэтому при аппроксимации полученной в эксперименте зависимости  $\chi^{odd}(d_{\text{Co}})$  единственным варьируемым параметром было отношение  $\chi_3^{odd}/\chi_2^{odd}$ , которое оказалось равным  $\chi_3^{odd}/\chi_2^{odd} \approx 2.3$ . Таким образом, основной вклад в генерацию ВГ от структуры Au–Co–Si дает граница раздела между кобальтом и кремнием.

Отметим, что описанный выше расчет магнитоиндуцированной ВГ в структуре Au–Co–Si дает хорошее согласие с экспериментом для массовой толщины кобальта более 2 нм, при меньших значениях  $d_{\text{Co}}$  расчетная зависимость демонстрирует значительное превышение интенсивности магнитоиндуцированной ВГ по сравнению с полученной в эксперименте. Причиной такого расхождения является невозможность описания процесса генерации ВГ в рамках рассмотренной выше интерференционной модели для малых значений толщины слоя кобальта.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, методами линейной и нелинейной магнитооптики исследованы магнитные и магнитооптические свойства нанослойной структуры кобальт–золото на кремниевой подложке. Обнаружено наличие локального максимума магнитооптического эффекта Керра, а также усиление нелинейно-оптического и магнитного нелинейно-оптического отклика на частоте второй гармоники (ВГ) в диапазоне массовой толщины кобальта  $d_{\text{Co}} = 1\text{--}2$  нм, соответствующей образованию наноостровковой структуры. Возможным механизмом такого усиления является возбуждение локальных поверхностных плазмонов и возрастание локальных оптических полей на частотах зондирующего излучения и ВГ в металлических наноостровках. С помощью метода нелинейно-оптического магнитного эффекта Керра установлено, что характерный масштаб толщины слоя кобальта, соответствующий формированию стационарной намагниченности границ раздела между Au и Co или Co и Si, составляет

около 2 нм. Показано, что эволюция спектров магнитооптического эффекта Керра в области значений  $d_{Co} = 5\text{--}15$  нм обусловлена изменением кристаллографической структуры кобальта.

Авторы выражают благодарность А. А. Никулину за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 07-02-01358-а, 08-02-90008-Бел\_а).

## ЛИТЕРАТУРА

1. В. В. Добровицкий, А. К. Звездин, А. Ф. Попков, УФН **166**(4), 439 (1996).
2. P. Bruno and C. Chappert, Phys. Rev. B **46**, 261 (1992).
3. D. P. Kumah, A. Cebollada, C. Clavero et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 2699 (2007).
4. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York (1984).
5. A. Kirilyuk, J. Phys. D: Appl. Phys. **35**, R189 (2002).
6. K. H. Bennemann, J. Magn. Magn. Mat. **200**, 679 (1999).
7. H. A. Wierenga, M. W. J. Prins, D. L. Abraham et al., Phys. Rev. B **50**, 1282 (1994).
8. H. A. Wierenga, W. de Jong, M. W. J. Prins et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 1462 (1995).
9. Б. П. Захарченя, В. Л. Корнев, УФН **175**(6), 628 (2005).
10. I. Zutic, J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
11. Ru-Pin Pan, H. D. Wei, and Y. R. Shen, Phys. Rev. B **39**, 1229 (1989).
12. O. A. Aktsipetrov, T. V. Murzina, E. M. Kim et al., J. Opt. Soc. Amer. B **22**, 137 (2005).
13. Р. Ченг, Т. Фуртак, *Гигантское комбинационное рассеяние*, Мир, Москва (1984).
14. A. K. Sheridan, A. W. Clark, A. Glidle et al., Appl. Phys. Lett. **90**, 143105 (2007).
15. C. Hubert, L. Billot, P.-M. Adam et al., Appl. Phys. Lett. **90**, 181105 (2007).
16. T. W. Ebbesen et al., Nature (London) **391**, 667 (1998).
17. A. V. Zayats and I. I. Smolyaninov, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. **5**(4), S16 (2003).
18. В. И. Белотелов, З. А. Волкова, Л. Л. Досколович и др., Изв. РАН, серия физ. **71**, 1574 (2007).
19. J. B. González-Díaz, A. García-Martín, J. M. García-Martín et al., Small **4**, 202 (2008).
20. V. I. Belotelov, L. L. Doskolovich, and A. K. Zvezdin, Phys. Rev. Lett. **98**, 077401 (2007).
21. L. V. Lutsev, A. I. Stognij, N. N. Novitskii et al., J. Magn. Magn. Mat. **300**(1), e12 (2006).
22. C. H. Lee, H. He, F. J. Lamelas, W. Vavra, C. Uher, and R. Clarke, Phys. Rev. B **42**, 1066 (1990).
23. А. И. Стогний, Н. Н. Новицкий, О. М. Стукалов и др., Письма в ЖТФ **30**(6), 87 (2004).
24. Е. А. Балькина, Е. А. Ганьшина, Г. С. Кринчик, ЖЭТФ **93**, 1879 (1987).
25. Л. В. Никитин, Л. С. Миронов, В. В. Летвинцев, В. Н. Каткевич, ФММ **2**, 92 (1991).
26. Г. С. Кринчик, В. А. Артемьев, ЖЭТФ **53**, 1901 (1967).
27. E. Gan'shina, V. Guschin, I. Romanov, and A. Tselev, J. Magn. Magn. Mat. **185**, 258 (1998).
28. О. А. Акципетров, И. М. Баранова, Ю. А. Ильинский, ЖЭТФ **91**, 287 (1986).
29. A. A. Fedyanin, N. V. Didenko, N. E. Sherstyuk et al., Opt. Lett. **24**, 1260 (1999).
30. A. Wokaun, J. G. Bergman, J. P. Heritage et al., Phys. Rev. B **24**, 849 (1981).
31. Е. А. Ганьшина, М. В. Вашук, А. Н. Виноградов, А. Б. Грановский и др., ЖЭТФ **125**, 1172 (2004).
32. B. Dieny, S. Sankar, M. R. McCartney et al., J. Magn. Magn. Mat. **185**, 283 (1998).
33. IPTI optical constant data base: <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/nk/>.