

УДК 535
©1995

ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В ЦЕНТРОСИММЕТРИЧНЫХ МАГНИТНЫХ ПЛЕНКАХ С ДОМЕННОЙ СТРУКТУРОЙ

И.Л. Любчанский

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина АН Украины
(Поступила в Редакцию 14 декабря 1994 г.)

Рассмотрена возможность генерации второй оптической гармоники в дипольном приближении, обусловленной неоднородным магнитоэлектрическим эффектом в центросимметричных магнитных пленках с доменной структурой.

В работах [1,2] сообщалось о наблюдении генерации второй гармоники (ГВГ) в тонких пленках железо-иттриевого граната (ЖИГ) $(\text{YBi})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$. Поскольку центросимметричные кристаллы ЖИГ описываются пространственной группой симметрии $Ia3d (O_h^{10})$ [3], то для них процесс ГВГ в дипольном приближении запрещен вследствие того, что все компоненты тензора квадратичной нелинейной оптической восприимчивости (НОВ) тождественно обращаются в нуль [4]. В центросимметричной среде ГВГ может быть обусловлена квадратичной квадрупольной поляризацией [4], или же кристалл должен быть помещен в постоянное внешнее электрическое поле (см. §7.3 в [4]). В последнем случае эффект будет описываться кубической дипольной поляризацией $P^{NL(3)}(2\omega)$, т.е. тензором НОВ четвертого ранга, компоненты которого отличны от нуля даже в центросимметричной среде. Однако известно [5], что в средах с центром инверсии снятие запрета на ГВГ в дипольном приближении возможно при учете квадратичной дипольной поляризации $P^{NL(2)}(2\omega)$ на поверхности образца. Это обусловлено тем, что наличие границы раздела приводит к понижению симметрии, в том числе и к отсутствию инверсии в группе симметрии приповерхностного слоя даже для изотропного вещества (см. гл. 25 в [4]).

Симметричный анализ тонких пленок ЖИГ различных ориентаций (001), (011), (111), (210) на подложках из гадолиний-галлиевого граната, проведенный в работе [2], показал, что группа симметрии таких образцов не содержит инверсии и, следовательно, ГВГ в дипольном приближении для таких структур должна быть разрешена. В числе возможных причин, приводящих к понижению симметрии пленок $(\text{YBi})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$,

были отмечены упругие деформации, возникающие вследствие различия постоянных решетки пленки и подложки; градиенты параметров решетки, появляющиеся в процессе выращивания образцов; неоднородности состава [2]. Ранее в [6] также была предложена модель, которая описывает квадратичную дипольную поляризацию на поверхности центросимметричного кристалла как результат неоднородной деформации в приповерхностном слое. Такая неоднородная деформация может быть обусловлена лазерным воздействием на кристалл; тонкими прозрачными пленками, нанесенными на поверхность образца; неоднородным распределением дефектов в приповерхностном слое [6]. Теоретические результаты, полученные в [2,6], описывают по сути одно и то же явление — возникновение квадратичной дипольной поляризации в центросимметричной среде, обусловленное наличием поверхности образца и сопутствующими ей неоднородностями. При этом формы тензоров нелинейных оптических восприимчивостей имеют одинаковый вид (см. формулы (1)–(4) в [2] и формулы (1), (2) в [6], а также табл. 1 в [7]).

С другой стороны, в некоторых магнитных материалах, которые центросимметричны в парафазе, магнитное упорядочение также может приводить к снятию запрета на дипольно-активную ГВГ [8–10]. Такой процесс обусловлен вкладом магнитной подсистемы в объеме кристалла в квадратичную дипольную поляризацию $P^{NL(2)}(2\omega)$ [8–10] (см. также обсуждение [11]). В этом случае кристаллографическая группа симметрии вещества включает в себя инверсию, а магнитная группа симметрии инверсии не содержит. Что же касается монокристаллов ЖИГ, то магнитное упорядочение не приводит к появлению в них квадратичной дипольной поляризации. Вместе с тем в [7,12,13] показано, что учет поверхностной намагниченности также может приводить к снятию симметричного запрета на дипольно-активную ГВГ.

Авторами недавней работы [2] на основании экспериментальных данных по ГВГ в тонких пленках ЖИГ эффект был интерпретирован на основании упомянутого выше немагнитного механизма, приводящего к квадратичной дипольной поляризации. Соответствующие измерения интенсивности ГВГ проводились в отсутствие внешнего магнитного поля как в монокристаллических пленках, так и в образцах с доменной структурой (ДС). Тем не менее, на наш взгляд, результаты экспериментов [2] указывают на возможный вклад магнитной подсистемы образцов в сигнал ГВГ. Из табл. 1 работы [2] видно, что существует определенная взаимосвязь между интенсивностью ГВГ I_{SHG} и наличием в образцах ДС. В частности, измерения показали, что в пленках № 1 и № 2 с лабиринтной ДС I_{SHG} была «сильной», а в пленке № 3 с лабиринтной ДС — «средней», тогда как в пленке № 4 без ДС — «слабой» [2]. Таким образом, проявляется корреляция между наличием ДС в образцах и интенсивностью сигнала ГВГ.

Поэтому несомненный интерес представляет исследование возможного механизма влияния наличия ДС в тонких магнитных пленках на процесс ГВГ, что и является целью настоящей работы.

1. Эффективная нелинейная оптическая восприимчивость

Как было отмечено выше из экспериментов, описанных в [2], видна определенная корреляция между наличием ДС в пленке ЖИГ и сигналом ГВГ: чем больше доменных границ (ДГ) в освещенной области образца, тем интенсивней излучение второй гармоники. Указанная зависимость интенсивности ГВГ от ДС в магнитной пленке может быть объяснена при учете неоднородного магнитоэлектрического эффекта (НМЭЭ) [14], суть которого состоит в следующем. Наличие в кристалле таких пространственных магнитных неоднородностей, как ДГ, приводит к возникновению на них статической электрической поляризации $\mathbf{P}^{DW}(0)$ [14] и соответственно электрического поля $\mathbf{E}^{DW}(0)$

$$E_i^{DW}(0) = (4\pi \kappa_0)^{-1} P_1^{DW}(0) = (4\pi \kappa_0)^{-1} f_{ij,kl} M_k \frac{dM_{ij}}{dx_l}, \quad (1)$$

где κ_0 — статическая поляризуемость кристаллической пленки, \mathbf{M} — вектор намагниченности, x_k — компонента радиус-вектора, $f_{ij,kl}$ — тензор НМЭЭ, некоторые компоненты которого отличны от нуля даже в центросимметричной среде.

Для описания влияния ДС на процесс ГВГ в магнитной пленке рассмотрим следующую модельную систему. Пусть группа симметрии магнитной пленки содержит инверсию, т.е. мы будем пренебрегать нарушением центросимметричности среды, обусловленной наличием поверхности и сопутствующими ей неоднородностями (см. выше). Пусть в пленке существует лабиринтная ДС, которая в среднем не приводит к понижению симметрии образца (в отличие от случая плоско-параллельной ДС). Не будем учитывать также тип ДГ (блоховская или неелевская), поскольку в рамках предлагаемого качественного рассмотрения эффекта ГВГ в магнитной пленке с ДС существенным является лишь наличие в образце градиентов намагниченности. Будем пренебрегать также квадратичной квадрупольной поляризацией.

Нелинейная поляризация такой магнитной пленки на частоте второй гармоники определяется выражением

$$\mathbf{P}^{NL}(2\omega) = \mathbf{P}^{NL(2)}(2\omega) + \mathbf{P}^{NL(3)}(2\omega). \quad (2)$$

В соответствии с [7,8] $\mathbf{P}^{NL(2)}(2\omega)$ представим в виде

$$\mathbf{P}_i^{NL(2)}(2\omega) = \left(\chi_{ijk}^{(2,0)}(2\omega; \omega, \omega) + \chi_{ijk}^{(2,m)}(2\omega; \omega, \omega) \right) E_j(\omega) E_k(\omega), \quad (3)$$

где $\chi_{ijk}^{(2,0)}(2\omega; \omega, \omega)$ и $\chi_{ijk}^{(2,m)}(2\omega; \omega, \omega)$ — независящий и зависящий от магнитной подсистемы кристалла тензоры НОВ, $\mathbf{E}(\omega)$ — электрическое поле падающего света с частотой ω . В центросимметричной среде все компоненты $\chi_{ijk}^{(2,0)}(2\omega; \omega, \omega)$ тождественно равны нулю [4], тогда как тензор $\chi_{ijk}^{(2,m)}(2\omega; \omega, \omega)$ может быть представлен в виде разложения по компонентам вектора намагниченности и его градиентам [8]. Для образца,

содержащего инверсию, у тензора НОВ $\chi_{ijk}^{(2,m)}(2\omega; \omega, \omega)$ отличными от нуля будут компоненты со следующей структурой [8]

$$\chi_{ijk}^{(2,m)}(2\omega; \omega, \omega) = \gamma_{ijklmn}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) M_l \frac{dM_m}{dx_n}. \quad (4)$$

Подставляя (4) в (3), получим

$$P_i^{NL(2)}(2\omega) = \gamma_{ijklmn}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) M_l \frac{dM_m}{dx_n} E_j(\omega) E_k(\omega). \quad (5)$$

Учитывая электрическое поле, обусловленное ДГ $\mathbf{E}^{DW}(0)$ (1), кубическую дипольную поляризацию $\mathbf{P}^{NL(3)}(2\omega)$ представим в виде

$$P_i^{NL(3)}(2\omega) = \chi_{ijkl}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l^{DW}(0). \quad (6)$$

Подставляя (5) и (6) в (2), получим

$$P_i^{NL}(2\omega) = \chi_{ijk}^{\text{eff}(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega), \quad (7)$$

где тензор эффективной квадратичной НОВ $\chi_{ijk}^{\text{eff}(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ имеет следующий вид

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{\text{eff}(2)}(2\omega; \omega, \omega) = & \left(\gamma_{ijklmn}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) + \right. \\ & \left. + (4\pi \kappa_0)^{-1} \chi_{ijkp}^{(3)}(2\omega; \omega, \omega, 0) f_{pl,mn} \right) M_l \frac{dM_m}{dx_n}. \end{aligned} \quad (8)$$

В формуле (8) для $\chi_{ijk}^{\text{eff}(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ учтено явное выражение $\mathbf{E}^{DW}(0)$ (1). Из (8) видно, что только в образцах с отличными от нуля градиентами намагниченности (например, при наличии ДГ) компоненты тензора $\chi_{ijk}^{\text{eff}(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ будут отличны от нуля. В дальнейшем для упрощения записи частотные зависимости компонент тензоров НОВ указывать не будем.

2. Интенсивность ГВГ. Некоторые оценки

Известно [4], что интенсивность ГВГ пропорциональна второй степени нелинейной поляризации образца на удвоенной частоте падающего света (8)

$$I_{\text{SHG}}(2\omega) \sim \left| \mathbf{P}^{NL(2)}(2\omega) \right|^2 \sim \left| \chi_{ijk}^{\text{eff}(2)} e_i^{2\omega} e_j^\omega e_k^\omega \right|^2 I_0^2(\omega). \quad (9)$$

Здесь $I_0(\omega)$ — интенсивность падающего излучения с частотой ω , $\mathbf{e}^{2\omega(\omega)}$ — векторы поляризации света с соответствующими частотами. Горизонтальная черта в (9) означает усреднение по распределению и ориентации ДГ в освещенной области образца.

Для нахождения средней величины в (9) воспользуемся оценкой, которая следует из формулы (8),

$$\left| \chi_{ijk}^{\text{eff}(2)} e_i^{2\omega} e_j^\omega e_k^\omega \right|^2 \sim \left| \gamma^{(2)} + \chi^{(3)} f(4\pi\kappa_0)^{-1} \right|^2 \left| M \frac{dM}{dx} \right|^2. \quad (10)$$

В (10) и далее $\gamma^{(2)}$, $\chi^{(3)}$ и f в (5) — отличные от нуля компоненты соответствующих тензоров, а

$$\overline{\left| M \frac{dM}{dx} \right|^2} = S^{-1} \int_S \left| M \frac{dM}{dx} \right|^2 dS, \quad (11)$$

где S — площадь пленки, освещенная лазерным лучом. Поскольку в ДГ происходит разворот вектора намагниченности, градиенты M будут отличны от нуля лишь вблизи ДГ. Тогда для пространственной производной от намагниченности можно использовать следующую оценку

$$\frac{dM}{dx} \sim \frac{M_0}{d_{DW}}, \quad (12)$$

где M_0 — намагниченность насыщения, d_{DW} — толщина ДГ. Следовательно, фактическое интегрирование в (11) должно проводиться по занимаемой ДГ площади S_{DW} , которая определяется следующим образом:

$$S_{DW} = L_{DW} d_{DW}. \quad (13)$$

Здесь L_{DW} — суммарная длина ДГ в освещенной области образца. Подставляя (12) в (11) и учитывая (13), а также то, что $M \sim M_0$, из (11) находим

$$\overline{\left| M \frac{dM}{dx} \right|^2} \sim (S d_{DW})^{-1} M_0^4 L_{DW}. \quad (14)$$

Воспользовавшись формулами (9), (10), (14), получим следующую оценку для интенсивности ГВГ

$$I_{\text{SHG}}(2\omega) \sim \left| \gamma^{(2)} + \chi^{(3)} f(4\pi\kappa_0)^{-1} \right|^2 (S d_{DW})^{-1} M_0^4 L_{DW} I_0^2(\omega). \quad (15)$$

Из (15) видно, что интенсивность ГВГ пропорциональна L_{DW} и, следовательно, будет чувствительной к изменениям параметров ДС магнитной пленки. Величины L_{DW} и d_{DW} существенным образом зависят от постоянного внешнего магнитного поля \mathbf{H}_0 , приложенного перпендикулярно к плоскости магнитной пленки [15]. Поэтому представляется целесообразным исследовать зависимость интенсивности ГВГ как функции величины и направления¹ \mathbf{H}_0 в пленках ЖИГ с лабиринтной

¹ Отметим, что измерения сигнала ГВГ в геометрии «на отражение» для противоположных направлений внешнего магнитного поля позволили найти отношение магнитной и немагнитной частей тензора НОВ в тонких пленках железа Fe(110) [16], сплава Гейсслера PtMnSb(111) [17] и слоистых структурах на основе Co/Au [18,19].

ДС. При увеличении напряженности внешнего магнитного поля структура ДС в магнитной пленке будет меняться (в том числе и L_{DW}). При некотором критическом значении H_0 образец перейдет в монокристаллическое состояние, т.е. $L_{DW} \rightarrow 0$ и, следовательно, интенсивность ГВГ, обусловленной НМЭЭ, также будет стремиться к нулю. В этом случае наблюдаемый в эксперименте сигнал ГВГ будет определяться описанными выше механизмами: немагнитной [5,6] и магнитной (при температуре $T < T_c$, T_c — температура Кюри) [7,12,13] составляющими поверхностной дипольной, а также объемной квадрупольной [4] нелинейными поляризациями.

3. Обсуждение результатов

Таким образом, в рамках простой модели показано, что наличие магнитных неоднородностей типа ДГ должно приводить к дипольно-активной ГВГ даже в центросимметричной пленке. При этом ГВГ будет обусловлена как квадратичной, так и кубической нелинейной поляризацией. Оценки относительного вклада $\gamma^{(2)}$ и $\chi^{(3)}f$ в эффект можно провести исходя из микроскопических выражений для соответствующих тензоров. Кроме того, учет типа ДГ (блоховская или неелевская), а также конкретных компонент тензоров НОВ, отличных от нуля для объекта заданной симметрии (например, O_h), по-видимому, приведет к различным поляризационным характеристикам сигнала ГВГ. Это позволит получать информацию структуре ДГ наряду с уже известными и широко используемыми магнитооптическими методиками. Исследование отмеченных выше особенностей ГВГ для магнитных пленок конкретной симметрии с ДГ различного типа будет проведено в отдельной работе.

Рассмотренный механизм ГВГ может проявляться и в магнетиках с длиннопериодическими магнитными сверхструктурами (спиралями), поскольку в них также возможно возникновение статической электрической поляризации, обусловленной НМЭЭ [20,21]. В связи с этим отметим работу [22], в которой описан эксперимент по наблюдению ГВГ в магнитоупорядоченной фазе сегнетомагнетика BiFeO_3 с антиферромагнитной спиралью, расположенной в базисной плоскости кристалла.

Наконец, отметим еще одну интересную возможность наблюдения сигнала ГВГ в магнитных пленках с ДС. Если в пленке ЖИГ создать с помощью внешнего магнитного поля периодическую полосовую ДС, то при определенных геометриях эксперимента можно будет наблюдать нелинейную магнитооптическую дифракцию. Подобное явление наблюдалось при исследовании эффекта ГВГ в пленках LiNbO_3 с периодически чередующимися ферроэлектрическими доменами [23]. Теоретическое описание ГВГ в магнитных пленках с периодической полосовой ДС будет опубликовано отдельно.

Автор признателен Б.Б.Кричевцову, Р.В.Писареву и А.Г.Селицкому за обсуждение экспериментов по наблюдению ГВГ в магнетиках, стимулировавшее данную работу, а также Е.П.Стефановскому и А.Э.Филиппову за полезные консультации и советы.

Работа выполнена в рамках проекта INTAS № 2675 «Non linear optical phenomena in thin magnetic film structures».

Список литературы

- [1] Акципетров О.А., Брагинский О.В., Есиков Д.А. Квантовая электрон. 17, 3, 320 (1990).
- [2] Pisarev R.V., Krichevtsov V.B., Gridnev V.N., Klin V.P., Frolich D., Pahlke-Lerch Ch. J. Phys. Cond. Mat. 5, 45, 8621 (1993).
- [3] Oles A., Kajzar F., Kucab M., Sikora W. Magnetic structures determined by neutron diffraction. Warszawa (1976).
- [4] Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики. М. (1989).
- [5] Shen Y.R. Ann. Rev. Mat. Sci. 16, 69 (1986).
- [6] Говорков С.В., Емельянов В.И., Коротеев Н.И., Петров Г.И., Шумай И.Л., Яковлев В.В. ЖТФ 59, 1, 98 (1989).
- [7] Pan R.-P., Wei H.D., Shen Y.R. Phys. Rev. B39, 2, 1229 (1989).
- [8] Ахмедиев Н.Н., Борисов С.Б., Звездин А.К., Любчанский И.Л., Мелихов Ю.В. ФТТ 27, 4, 1075 (1985).
- [9] Гиргель С.С., Демидова Т.В. Опт. и спектр. 62, 1, 101 (1987).
- [10] Борисов С.Б., Дадоевкова Н.Н., Любчанский И.Л., Соболев В.Л. ФТТ 32, 12, 3668 (1990).
- [11] Еременко В.В., Харченко Н.Ф., Литвиненко Ю.Г., Науменко В.М. Магнитооптика и спектроскопия антиферромагнетиков. Киев (1989). С. 69.
- [12] Pan R.-P., Shen Y.R. Chin. J. Phys. (Taipei) 25, 1, 175 (1987).
- [13] Bennemann K.-H., Hübner W. Phys. Rev. B40, 9, 5973 (1989).
- [14] Барьяхтар В.Г., Львов В.А., Яблонский Д.А. Письма в ЖЭТФ 37, 5, 565 (1983).
- [15] Хуберт А. Теория доменных стенок в упорядоченных средах. М. (1977).
- [16] Reif J., Zink J.C., Schneider C.-M., Kirshner J. Phys. Rev. Lett. 67, 10, 2878 (1991).
- [17] Reif J., Rau C., Matthias E. Phys. Rev. Lett. 71, 12, 1931 (1993).
- [18] Spierings G., Koustos V., Wierenga H.A., Prins M.W.J., Abraham D., Rasing Th. J. Magn. Magn. Mater. 121, 109 (1993).
- [19] Spierings G., Koustos V., Wierenga H.A., Prins M.W.J., Abraham D., Rasing Th. Surf. Sci. 287/288, 747 (1993).
- [20] Барьяхтар В.Г., Стефановский Е.П., Яблонский Д.А. Письма в ЖЭТФ 42, 2, 258 (1985).
- [21] Стефановский Е.П., Яблонский Д.А. ФТТ 28, 4, 1125 (1986).
- [22] Агальцов А.М., Горелик В.С., Звездин А.К., Мурашов В.А., Раков Д.Н. Краткие сообщения по физике (ФИАН СССР), 5, 37 (1989).
- [23] Magel G.A., Fejer M.M., Byer R.L. Appl. Phys. Lett. 56, 2, 108 (1990).