

磁诱导的光学二次谐波及其应用*

钱冬 董国胜 金晓峰¹⁾

(复旦大学应用表面物理国家重点实验室 上海 200433)

摘要 介绍一种新近发展起来的,利用光学非线性效应来进行磁学测量的实验方法——磁诱导的光学二次谐波.该方法不仅对于表面的对称性及磁性结构具有极高的探测灵敏度,更重要的是它还是现在极少数可对多层薄膜的界面进行研究的新技术,这为当今非常活跃的磁性单层、多层膜的研究工作提供了一个强有力的手段.

关键词 非线性,磁诱导,二次谐波

MAGNETIZATION-INDUCED OPTICAL SECOND HARMONIC GENERATION AND ITS APPLICATIONS

QIAN Dong DONG Guo Sheng JIN Xiao Feng

(Surface Physics Laboratory, Fudan University, Shanghai 200433)

Abstract A new technique magnetization induced optical second harmonic generation, which uses nonlinear optical effects for magnetic studies. It is one of the few techniques that can be used to study the buried interface of magnetic multilayers, and has become a powerful tool for studying magnetic films due to its extreme sensitivity in detecting interface symmetry and interface magnetic structure.

Key words nonlinear, magnetization - induced, second harmonic

1 引言

近 20 年来,人们对于磁性超薄膜及多层膜体系的研究日益广泛和深入,对于它们的磁学性质的实验研究已经发展了很多好的方法.它们大致可以分为三类:一类是利用自旋极化的电子作为探测粒子,例如自旋极化的光电子谱(SRPES),极化分析的扫描电子显微镜(SEMPA)等;另一类是利用线性光学作为探测手段,例如磁光克尔效应谱(MOKE)等;还有一类是将传统的磁学测量技术推广到超高真空条件下,例如铁磁共振(FMR),转矩磁强计(TOM)等.这三大类方法在探测超薄膜磁性方面,目前都已具备很高的灵敏度,但在界面的表征上都存在困难.对于自旋极化的电子而言,它虽然具有极高的表面灵敏度,但是由于探测深度太浅,难以反映深埋其中的界面的信息.而后两类测量得到的信息主要来自体效应,很难从中分辨出界面的贡献.这些年来的研究表明,界面对于磁性器件有相当大的影响,因此如何研究界面的性质也就变得非常重要和迫切了.事实上,如果利用光学二次谐波(SHG)对于表面及界面

反应特别灵敏这一特点^[1],是有可能准确测量表面及界面的磁学性质的,这就是磁诱导的光学二次谐波(MSHG)技术.MSHG作为一种非线性光学技术,既有极高的表面及界面的灵敏度,又有光学探测所具有的实时、原位、无损和高穿透的一般特性,而且实验装置又比较简单,因此是超薄膜磁学研究的一种新的有效手段.

MSHG的最初想法是由 Pan^[2]和 Hubner^[3]等在 1989 年提出的,很快在 1991 年就由 Reif^[4]和 Spierings^[5]等人在实验上证实了.近年来,MSHG更是有了进一步的发展和应用.根据国内外的学术动态,本文对 MSHG 的理论、实验方法以及研究的进展作一简单的介绍.

2 理论基础

对于处在外加电场 $E(\omega)$ 中的介质,如果考虑

* 国家自然科学基金、教育部博士点基金、上海市科委基金、霍英东教育基金会高等院校青年教师基金和香港“求是”基金资助项目
1999 - 02 - 08 收到初稿,1999 - 03 - 30 修回

1) 通信联系人, E-mail: XFJIN@Fudan.ac.cn

其非线性极化,那么在只考虑电偶极距贡献的情况下,对应于 2ω 的非线性极化强度可以表示为^[1]

$$P(2\omega) = \chi^{(2)} : E(\omega) E(\omega), \quad (1)$$

其中 $\chi^{(2)}$ 是二阶非线性极化率,它是个三阶张量,有 27 个矩阵元.对于具有中心对称的物质,显然 $\chi^{(2)}$ 每个矩阵元都是零,不存在二次谐波效应.但如果考虑表面和界面,很明显,由于反演对称性被打破,这样 $\chi^{(2)}$ 就会出现非零的矩阵元,出现二次谐波,这是二次谐波对表面及界面敏感的基本原因.如果考虑的物质不仅具有中心反演对称,而且还是一磁性系统,因此它存在自发磁化强度 M ,但值得指出的是,磁化强度是个轴矢量,它将不会改变材料原有的反演对称性,因此体的磁矩在电偶极近似下对 2ω 光不会产生影响,也就是说,磁性样品的体内仍然不会产生二次谐波效应.但表面的情况就不同了,它的对称性会因为 M 的引入而进一步的降低,从而使得 $\chi^{(2)}$ 发生变化,造成出射的 2ω 光包含了表面或界面的磁性的信息.此时的极化率张量是 M 的函数.

当然, $\chi^{(2)}$ 的具体形式与物质的种类以及物质的表面对称性有关, $\chi^{(2)}$ 每一个矩阵元都可以详细计算,在这里不再列举.下面,我们只是通过对称操作来定性说明加上自发磁化前后 $\chi^{(2)}$ 的变化.为此我们引入对称操作方程:

$$\chi'_{ijk} = T_{i'i, j'j, k'k} \chi_{ijk} \quad i, j, k = x, y, z, \quad (2)$$

这里的 $T_{i'i, j'j, k'k}$ 表示将坐标轴 x, y, z 转为 x', y', z' 的旋转对称操作变换矩阵.

为了说明方便,又不失一般性,下面以面心立方晶体(001)面为例,利用对称性来考虑 $\chi^{(2)}$ 在 M 出现前后的变化(这里只考虑面内磁化情况,即磁化强度 M 躺在面内).如图 1 所示, $x-y$ 面即为所考虑的表面, x 轴沿 $[100]$ 方向, z 轴沿面的法线方向, M 平行于 $[100]$ 方向.

当 $M=0$ 时,表面结构具有关于 z 轴,也就是

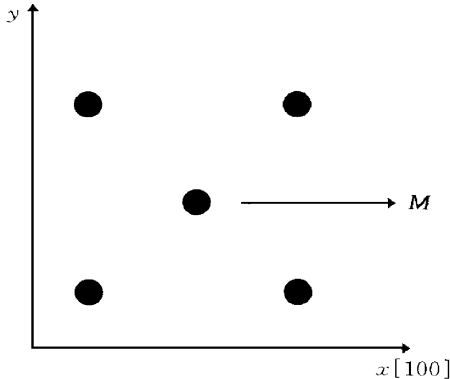


图 1 面心立方晶体(001)面坐标轴和 M 方向

表面法线方向的四度对称性.在这种对称性下面,可以用来判定 $\chi^{(2)}$ 哪些矩阵元为零.以 $\chi^{(2)}$ 的第一个矩阵元 $\chi_{xxx}^{(2)}$ 为例,如果绕 z 轴转 180° ,也就是将 x 变为 $-x, y$ 变为 $-y$,利用(2)式,可以得到变换后的 $\chi'^{(2)}$,它的第一个矩阵元 $\chi'_{xxx} = -\chi_{xxx}^{(2)}$,但由于整个表面具有四度对称性,因此按上述的对称操作不会改变极化张量,所以要求 $\chi'_{xxx} = \chi_{xxx}^{(2)}$,这样的话, $\chi_{xxx}^{(2)} = -\chi_{xxx}^{(2)}$,那么 $\chi_{xxx}^{(2)}$ 只有等于零.按照同样的做法,很容易证明 $\chi^{(2)}$ 只存在 7 个非零矩阵元 $\chi_{xzx}^{(2)} = \chi_{xxz}^{(2)} = \chi_{yzy}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)}, \chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{zzy}^{(2)}, \chi_{zzz}^{(2)}$,因此 27 个矩阵元中只有 3 个是独立的.而当 $M \neq 0$ 时, (001) 表面原先具有的关于 z 轴的四度对称性被打破,只存在两个独立的对称操作:(1)关于 $x-z$ 面的镜面反射, x 保持不变, y 变成 $-y, M$ 变成 $-M$ (注意,这是由 M 是一轴矢量的性质所决定的); (2)关于 $y-z$ 面的镜面反射, x 变成 $-x$,而 y 保持不变, M 也不变(与前同理).通过(2)式,按照上述同样的做法可以得到 14 个非零矩阵元, $\chi_{xxx}^{(2)\text{even}} = \chi_{xzx}^{(2)\text{even}}, \chi_{xxz}^{(2)\text{even}} = \chi_{yzy}^{(2)\text{even}}, \chi_{zxx}^{(2)\text{even}}, \chi_{zzy}^{(2)\text{even}}, \chi_{zzz}^{(2)\text{even}}, \chi_{xxy}^{(2)\text{odd}} = \chi_{xyx}^{(2)\text{odd}}, \chi_{yxx}^{(2)\text{odd}}, \chi_{yyy}^{(2)\text{odd}}, \chi_{yzz}^{(2)\text{odd}}, \chi_{zzy}^{(2)\text{odd}}$,其中独立的有 10 个(even 表示是 M 的偶函数,odd 表示是 M 的奇函数).由此可以看出,在引入自发磁化前后,光学二次谐波所对应的 $\chi^{(2)}$ 矩阵元发生了很大的变化,因此通过观察这些由于自发磁化而产生的新的 $\chi^{(2)}$ 非零矩阵元,原则上就有可能测量表面磁结构.

3 实验方法

通过选择适当的入射光和出射光的偏振方向,可以用 MSHG 来测定 $\chi^{(2)}$ 的各个非零矩阵元.我们可以考虑如下实验结构图,如图 2.

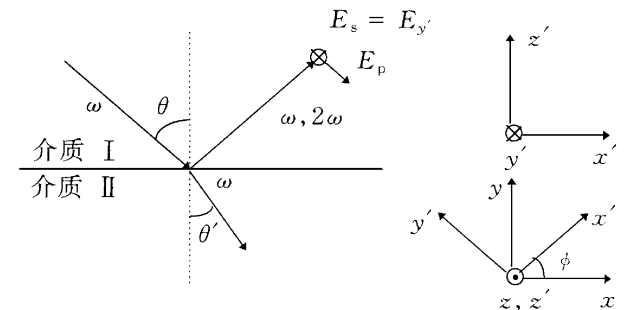


图 2 $\chi^{(2)}$ 矩阵元探测结构图

取介质 I (空气)和介质 II (面心立方磁性物质)的界面(001)面作为 $x-y$ 平面, $x-y$ 轴方向如图

1 所示, z 轴是面的法向, x', y' 轴位于 $x - y$ 平面内, 光的入射平面是 $x' - z'$ 平面, y' 轴与入射面垂直, z' 轴和 z 轴重合. 入射角为 θ , 折射角为 θ' (相对于 z 轴), ϕ 为 x 和 x' 的夹角.

下面, 我们举个简单例子来说明 $\chi^{(2)}$ 非零矩阵元的测量, 假设自发磁化 $M \parallel [100]$ 方向. 如果我们以 s 光入射, 也就是说外场 E 只有 y' 方向的分量 $E_{y'}$, 将 E 代入(1)式, 就可以得到如下所示的表面二阶非线性极化强度 P_s :

$$P_s = \begin{pmatrix} \chi_{x'y'y'}^{(2)} \\ \chi_{y'y'y'}^{(2)} \\ \chi_{z'y'y'}^{(2)} \end{pmatrix} E_{y'} E_{y'} \quad (3)$$

这个极化强度可以看作是产生二次谐波的波源, 因此只要测量出射二次谐波的强度, 原则上就可以确定 P_s , 从而可以确定极化率. 如果我们就测量出射光中 s 偏振的 SH 信号, 那么便能得到上述 P 中 y' 分量 $P_{s,y'}$. 利用坐标变换, 就可以得到 $P_{s,y'}$ 与 $\chi^{(2)}$ 的关系, 现将坐标变换的矩阵

$$T_{x',y',y} = \begin{pmatrix} \cos \phi & \sin \phi & 0 \\ -\sin \phi & \cos \phi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

代入(2)式求得 $\chi^{(2)}$, 再代入(3)式, 最后得到

$$P_{s,y'} = | [2 \chi_{x'xy'}^{(2)} + \chi_{y'xx'}^{(2)}] \sin^2 \phi \cos \phi + \chi_{y'yy'}^{(2)} \cos^3 \phi | E_{y'} E_{y'} \\ \propto C_1 \cos \phi + C_2 \cos(3\phi).$$

我们只要通过改变 ϕ 角, 就能够分别得到 $\chi_{x'xy'}^{(2)}$, $\chi_{y'xx'}^{(2)}$ 和 $\chi_{y'yy'}^{(2)}$. 按照上述方法, 选择不同偏振方向的入射和出射光, 可以测量得到 $\chi^{(2)}$ 的所有非零矩阵元.

详细的理论计算和实验^[2]表明, 磁矩为零时, 金属表面的 $\chi^{(2)}$ 的非零矩阵元 $\chi_{ijk}^{(2)}(0) \sim 10^{-15}$ esu, 而在有了磁矩以后, $\chi^{(2)}$ 矩阵元的变化量 $\Delta \chi_{ijk}^{(2)}(M) \sim 10^{-16}$ esu. 由于现在表面 SHG 的探测精度已经达到 $\chi^{(2)} < 10^{-17}$ esu, 因此在实验上利用 MSHG 测量表面的磁结构是完全可行的.

在实际的实验测量中, MSHG 测量的是当样品分别处于正反磁化方向时, 出射的二次谐波的强度 $I(2\omega, M)$ 和 $I(2\omega, -M)$. 当然还可以测二次谐波偏振面相对入射光的偏转^[6]. 在实验中为了增大二次谐波的强度, 一般用脉冲激光器, 例如纳秒、皮秒和飞秒激光器. 实验测量有几种模式, 如果入射的是 s 光, 最后测量的是出射的 p 光, 那叫 (ps) 模式, 同样还有 (sp) (pp) (ss) 模式.

在实际处理中, 还往往引入一个磁反对称量 A . 其定义如下:

$$A = \frac{I(2\omega, M) - I(2\omega, -M)}{I(2\omega, M) + I(2\omega, -M)}$$

它反映了磁矩的大小.

MSHG 测量最常用的实验装置如图 3. 由于激光器的性能或信噪比的要求不同也可以有更复杂的设计.

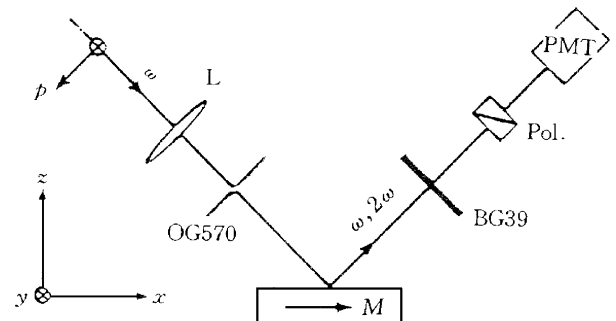


图 3 MSHG 测量的实验装置图

(OG570:起偏器; Pol:检偏器; L:透镜; BG39:滤光片; PMT:接收器)

值得指出的是, 在上面的理论及实验中, 都只是考虑电偶极矩的贡献, 而在实际体系中, 电四极矩和磁偶极矩的影响在一定程度上还是存在的, 但一般来说它们的贡献比较小, 而且由它们引起的信号具有和电偶极矩引起的信号不同的对称性, 因此可以加以区别^[21].

4 应用举例

4.1 线性的 MOKE 和 MSHG 对于 Co/Cu 体系的研究比较

H. A. Wierenga^[7]等人用 MOKE 和 MSHG 分别对 Co/Cu(001) 体系的饱和磁化强度随厚度的变化进行了比较研究, 结果如图 4 所示. 在图中, 虚线

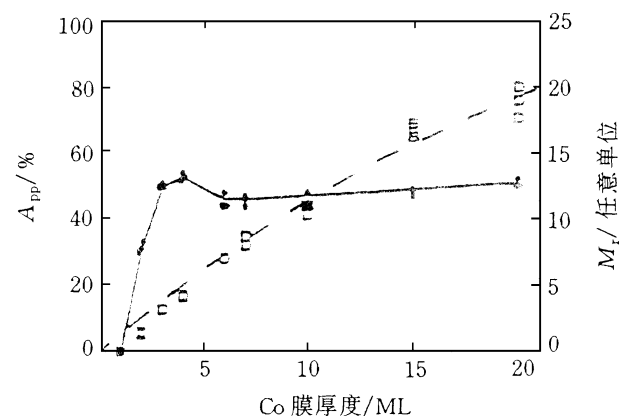


图 4 MOKE 所测得的磁滞回线信号的幅度以及 MSHG 的磁反对称量 A (pp 模式) 随 Co 厚度的变化 (虚线表示 MOKE 信号, 实线表示 A)

表示的是用 MOKE 测得的磁滞回线的信号的幅度,它是随着膜厚的增加而近线性增大.实线表示的是 MSHG 测得的磁反对称量 A ,它先是随 Co 膜厚度的增加而增加,但当膜厚超过一定值后, A 就基本上不变了.在这里磁反对称量 A 包含两个界面的贡献:真空/Co 和 Co/Cu 衬底.从中可以看出 MSHG 和 MOKE 不同,它对于表面及界面的确具有极好的灵敏度,因此是对 MOKE 测量技术的一个有益的补充.

4.2 Co 在 Cu(001) 上生长过程中表面磁矩周期振荡的研究

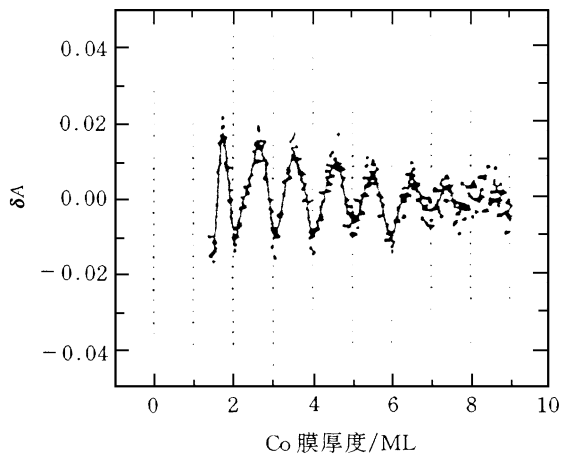


图 5 二次谐波的磁反对称量 A 随 Co 厚度变化图

Q. Y. Jin^[8] 等人利用 MSHG 对于 Co 在 Cu(001) 上生长过程进行了研究,发现在生长过程中磁反对称量 A 有周期性振荡(见图 5).这反映了表面总原子磁矩的振荡现象.它产生的原因是因为:在生长过程中,当 Co 原子铺满半层的时候,处于台阶边缘位置上的 Co 原子数目最多,而台阶边缘原子的磁矩要比非边缘原子的磁矩大,从而导致反对称量 A 以一个单层的周期振荡.

参 考 文 献

- [1] Shen Y R. The Principles of Nonlinear Optics. New York: Wiley, 1984
- [2] Pan R P, Wei H D, Shen Y R. Phys. Rev. B, 1989, 39: 1229—1234
- [3] Hubner W, Benne mann K H. Phys. Rev. B, 1989, 40: 5973—5979
- [4] Reif J, Zink J C, Schneider C M *et al.* Phys. Rev. Lett., 1991, 67: 2878—2881
- [5] Spierings G, Koutsos V, Wierenga H A *et al.* Surf. Sci., 1993, 287/288: 747—749
- [6] Pustogowa U, Hubner W, Benne mann K H. J. Magn. Magn. Mater., 1995, 148: 269—272
- [7] Wierenga H A, Jong W de, Prins M W J *et al.* Phys. Rev. Lett., 1994, 74: 1462—1465
- [8] Jin Q Y, Regensburger H, Vollmer R *et al.* Phys. Rev. Lett., 1998, 80: 4056—4059

(上接第 185 页)

应用”的主要参加者,曾主持国家自然科学基金项目“孤子理论和实验研究”、“可积模型和共形不变性”和浙江省自然科学基金项目“若干经典和量子的非线性现象”、“可积系统的新对称和无穷多守恒律”、“高维孤子研究”和“青年人才基金”等,也是国家科委攀登计划的参加者.1994 年,1996 年分别获得国家教委科技进步三等奖、二等奖.楼森岳是我国培养的优秀青年理论物理工作者之一,在可积系统理论领域取得一系列创造性的成果,其中包括:(1)在 $1+1$ 维可积模型方面提出和发展了逆递推算子方法;(2)在 $2+1$ 维模型的对称性研究方面建立了形式级数对称法;(3)在 $2+1$ 维可积模型方面建立了无穷多 Lax 对理论;(4)在对称性约化方面将直接法推广到高维方程及方程组的情形.利用上述这些

新方法,他得到大量有兴趣的新结果,在实验上发现双原子格点体系的能隙孤子等.他还基于对可积模型对称性的深入研究,得到一些任意维的在一定意义下可积的模型.楼森岳同志的研究工作,绝大多数是在国内完成的,他工作勤奋,发表在《SCI》上的论文有 100 余篇.其全国个人排位于 1991,1993,1994,1997 年分别为第四名、第二名、第五名、第二名.他学风严谨,勇于创新,有很强的科研能力.他的工作在国际上有较大的影响,有两篇文章发表在很少发表数学物理方面文章的《Phys. Rev. Lett》上,他作为第一作者的论文被《SCI》引用 149 次以上.1997 年个人论文被《SCI》引用数排名全国第一.

(国家自然科学基金委员会数理学部 胡仁元)