Письма в ЖЭТФ, том 118, вып. 8, с. 584 – 589 © 2023 г. 25 октября

Пространственно неоднородное сверхбыстрое размагничивание никелевого магнитоплазмонного кристалла

И. А. Новиков, М. А. Кирьянов, А. Ю. Фролов, В. В. Попов, Т. В. Долгова, А. А. Федянин[1)]

Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 августа 2023 г.
После переработки 8 сентября 2023 г.
Принята к публикации 11 сентября 2023 г.

В эксперименте по субпикосекундному лазерному размагничиванию одномерного полностью никелевого магнитоплазмонного кристалла наблюдается уменьшение величины сверхбыстрого магнитооптического эффекта Керра на 50 % при плотности энергии размагничивающего фемтосекундного импульса, сравнимой с величиной, необходимой для достижения аналогичных значений в тонких пленках. Расчеты показывают, что такое уменьшение не соответствует снижению намагниченности всей поверхности на 50 %, а является результатом появления размагниченных и не размагниченных участков поверхности.

DOI: 10.31857/S1234567823200065, EDN: orgvnk

Экспериментальные исследования сверхбыстрого лазерного размагничивания начались с пионерской работы по наблюдению нестационарного магнитооптического эффекта Керра в тонкой пленке никеля под действием фемтосекундного лазерного импульса [1]. Оказалось, что характерное время изменения намагниченности заметно меньше периода прецессии магнитных моментов. На протяжении почти трех десятков лет для описания этого явления выдвигались различные концепции, такие как трехтемпературная модель и расширения двухтемпературной модели [1–3], механизм Эллиота–Яфета [4–6], уравнение Ландау–Лифшица–Блоха [7], теория функционала плотности с временным разрешением [8–10]. Модели предсказывают близкие значения времен размагничивания, но расходятся в оценке значений необходимой плотности энергии. Более того, экспериментальные [11, 12] и теоретические [13, 14] исследования показали, что степень размагничивания металлических пленок существенно зависит от их толщины.

Наноразмерные системы поддерживают возбуждение различных электромагнитных мод, позволяющих концентрировать электромагнитное излучение. Примерами таких мод являются ми-резонансы [15, 16], связанные состояния в континууме [17, 18], волноводные моды [19], блоховские поверхностные волны [20], таммовские [21], локализованные [22, 23] и решеточные [24, 25] плазмоны, поверхностные плазмон-поляритоны [26–28]. Концентрация электромагнитного излучения позволяет повысить эффективность оптического нагрева [29, 30], приводит к усилению нелинейно-оптических [31] и магнитооптических [32–34] явлений, а в экспериментах по сверхбыстрому лазерному размагничиванию позволяет снизить пороговые значения энергии импульса накачки [35, 36], а также повысить чувствительность методов детектирования [37]. Однако, наноструктурирование приводит к появлению дополнительных сверхбыстрых процессов и связанных с ними характерных времен. Было показано, что требуется учитывать плазмон-индуцированные межзонные переходы [38], процессы электронной диффузии при неоднородном нагреве [39], термоакустические явления [40, 41], низкоразмерные эффекты [42]. Подобные особенности также могут влиять на результаты исследования сверхбыстрой динамики магнитных процессов в наноструктурированных пленках ферромагнетиков.

В данной статье экспериментально показано, что в объемном никеле с субволновой модуляцией профиля поверхности сверхбыстрый магнитооптический эффект Керра уменьшается на 50 % на субпикосекундном временном масштабе при плотности энергии размагничивающего импульса, сравнимой с величиной, необходимой для достижения аналогичных значений в тонких пленках. Численно продемонстрировано, что такое уменьшение не соответствует снижению намагниченности всей поверхности никеля, а является результатом появления периодических размагниченных и не размагниченных участков поверхности.

Исследуемый одномерный магнитоплазмонный кристалл (МПК) представляет собой никелевую

[1)]e-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru

пластину толщиной 500 мкм с поверхностью волнообразной формы. Образец был изготовлен методами электронно-лучевой литографии и гальванопластики. Сначала на стеклянную подложку наносился 500-нм слой негативного фоторезиста, который затем экспонировался электронным пучком для создания периодической структуры. После чего резист проявлялся, а на получившийся рельеф напылялся тонкий проводящий слой серебра (~ 50 нм). На поверхности получившейся маски методом гальванопластики наращивался слой никеля толщиной 500 мкм. Далее получившаяся структура механически отделялась от поверхности фоторезиста, слой серебра удалялся химически.

Характеризация магнитоплазмонного кристалла проводилась на атомно-силовом и сканирующем электронном микроскопах. Было получено, что форма поверхности образца близка к синусоидальной, амплитуда первой пространственной гармоники составляет 45 нм, что соответствует глубине модуляции поверхности 90 нм, амплитуды второй и последующих пространственных гармоник не превышают 1–2 нм. Пространственный период образца составляет 503 ± 2 нм. Образец был ранее детально исследован оптическими и магнитооптическими методами в работе [32]. Было получено, что в нем поддерживается возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов минус первого порядка для широкого диапазона углов падения излучения в видимом спектральном диапазоне. Пространственная конфигурация образца соответствует условию критического связывания ($\Gamma_{abs} = \Gamma_{\mathrm{rad}}$) [30, 32]. В спектре коэффициента отражения наблюдается резонанс типа Фано с близким к нулю значением в минимуме. Значение экваториального магнитооптического эффекта Керра (ЭМОЭК) в исследуемом образце в области резонанса доходит до $2.4 \cdot 10^{-2}$, что соответствует 77-кратному усилению по сравнению с неструктурированной пленкой. В работе [37] в рассматриваемом никелевом МПК проводилось исследование сверхбыстрых процессов, вызванных лазерным нагревом импульсом с длиной волны 800 нм, плотностью энергии 7 мДж/см^2 на длине волны зонда 645 нм, лежащей в окрестности минимума плазмонного резонанса. Было обнаружено изменение коэффициента отражения образца на 6 % и снижение абсолютного значения ЭМОЭК в нем на 65 % с $1.2 \cdot 10^{-2}$ до $4 \cdot 10^{-3}$.

В данной работе исследование сверхбыстрого лазерного размагничивания никелевого магнитоплазмонного кристалла проведено в схеме фемтосекундной спектроскопии с временным разрешением "зонд-накачка". В качестве источника излучения использовался титан-сапфировый фемтосекундный лазер с регенеративным усилителем Coherent Libra с центральной длиной волны 800 нм, длительностью импульса 70 фс и частотой повторения 1 кГц. Импульс на светоделительной пластинке разделялся на два, один из которых под нормалью падал на образец, нагревая его (импульс накачки). Для этой длины волны при нормальном падении поверхностный плазмон не возбуждается. Второй пучок генерировал суперконтинуум в кристалле сапфира в спектральном диапазоне от 500 до 1400 нм, который в дальнейшем падал на образец под углом 12° и использовался для зондирования. Для данного угла падения длина волны возбуждения поверхностных плазмонов в исследуемом образце составляет 620 нм [32]. В плече зондирования излучение с длиной волны больше 750 нм обрезалось коротковолновым фотонно-кристаллическим фильтром. Плотность энергии излучения пучка накачки на поверхности образца составляла 6 мДж/см^2 и порядка 1 нДж/см^2 для пучка зондирования, диаметры пучков – 700 и 400 мкм, соответственно. Насыщающее магнитное поле величиной 500 Гс прикладывалось к образцу перпендикулярно плоскости падения излучения в экваториальной геометрии.

В эксперименте измерялся магнитооптический контраст $\Delta\delta$, определяемый как разность значений эффекта Керра под действием и в отсутствии накачки:

$$\Delta\delta(\tau) = \delta_{\mathrm{pump}}(\tau) - \delta_{\mathrm{no\,pump}}, \qquad (1)$$

где τ – время задержки между импульсами накачки и зонда. Для нахождения значений δ использовалось выражение:

$$\delta = 2\frac{R(H) - R(-H)}{R(H) + R(-H)}. \qquad (2)$$

Экспериментальные спектры магнитооптического контраста магнитоплазмонного кристалла для различных времен задержки между импульсами накачки и зонда представлены на верхней части рис. 1. Наиболее существенное изменение $\Delta\delta$ наблюдается в спектральной области от 600 до 640 нм, соответствующей области плазмонного резонанса. Модуляция эффекта Керра достигает максимума на временной задержке $\tau = 500$ фс, соответствующей времени размагничивания никеля [1]. Спектр магнитооптического контраста $\Delta\delta$ для данной временной задержки представлен на нижней части рис. 1 вместе со спектрами эффекта Керра δ_{pump} (синие точки) и $\delta_{\mathrm{no\,pump}}$ (синяя кривая). Под действием лазерного нагрева происходит сдвиг резонанса в спектре

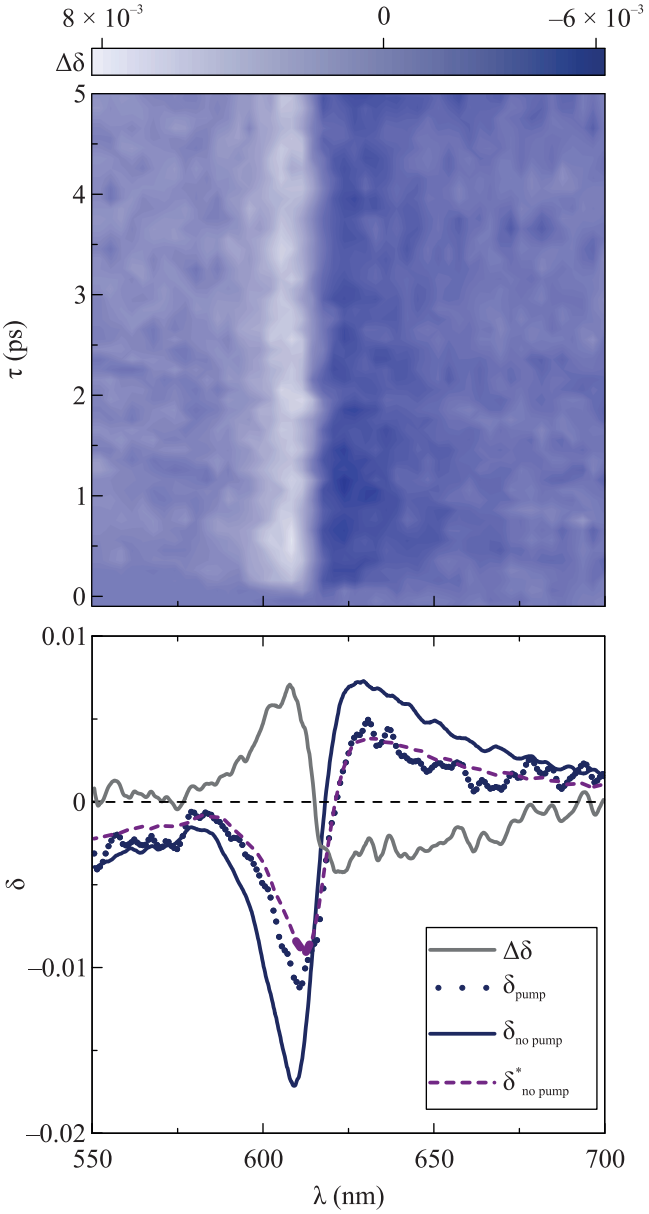

Рис. 1. (Цветной онлайн) Верхний рисунок: зависимость магнитооптического контраста $\Delta\delta$ исследуемого образца от времени задержки τ между импульсами и от длины волны λ зондирующего импульса. Нижний рисунок: спектр магнитооптического контраста (серая кривая) исследуемого образца при временной задержке $\tau = 500$ фс. Также представлены спектры ЭМОЭК при отсутствии $\delta_{\text{no pump}}$ (синяя кривая) и под действием (синие точки) δ_{pump} накачки. Описание кривой, показанной фиолетовой прерывистой линией, приводится в основном тексте

ЭМОЭК на 3 нм и уменьшение его абсолютных значений в два раза. Это может быть обусловлено двумя факторами – сверхбыстрым размагничиванием никеля и изменением волнового вектора поверхностного плазмона k_{SPP}. Изменение его действительной части ($\Delta k'_{SPP} \neq 0$) должно приводить к сдвигу плазмонного резонанса, а мнимой части ($\Delta k''_{SPP} \neq 0$) – к изменению его добротности. Однако под действием излучения накачки уширения спектра ЭМОЭК не наблюдается, модификация волнового вектора поверхностного плазмона сводится к изменению его действительной части. Компенсировав соответствующий сдвиг плазмонного резонанса, можно получить вклад от размагничивания: если сдвинуть кривую $\delta_{\text{no pump}}$ на величину 3 нм в длинноволновую область и уменьшить ее абсолютные значения в 2 раза, то полученная кривая $\delta^*_{\text{no pump}}$ (показана фиолетовой пунктирной кривой на нижней части рис. 1) практически совпадет с δ_{pump}. Таким образом, лазерное размагничивание 70-фс импульсом с длиной волны 800 нм и плотностью энергии 6 мДж/см^2 вызывает 50 % уменьшение абсолютных значений ЭМОЭК в окрестности плазмонного резонанса.

Наблюдаемое в эксперименте уменьшение величины ЭМОЭК в объемном образце при данной плотности энергии импульса накачки характерно для тонких никелевых пленок толщиной 15–20 нм [1, 11, 43]. Однако известно, что объемные образцы размагничиваются слабее пленок [44]. В работе [45] было показано, что для 65 % размагничивания объемного никеля требуется плотность энергии, сравнимая с порогом плавления. Эта особенность может быть связана с пространственной неоднородностью рельефа образца, которая влияет на пространственное распределение областей нагрева и зондирования. Для исследования этого вопроса были проведены расчеты оптического поглощения импульса накачки и динамики распределения температуры в образце с помощью двухтемпературной модели.

Расчеты стационарного распределения электрической компоненты ближнего поля в исследуемом образце и поглощенной им энергии на длинах волн накачки (800 нм) и зондирования (617 нм) проводились в программном пакете Comsol Multiphysics. Геометрия образца (пространственный период, глубина модуляции), а также условия эксперимента (углы падения соответствующих пучков, поляризация, плотность энергии источника) воспроизводились в модели. Расчет температурной динамики проводился в рамках двухтемпературной модели [46] – системы дифференциальных уравнений в частных производных параболического типа, описывающей процессы теплообмена между электронами и фононами в металле:

$$\begin{cases} \gamma T_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(K_e \nabla T_e) - g(T_e - T_l) + S(r,t) \\ C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = \nabla(K_l \nabla T_l) + g(T_e - T_l), \end{cases} \quad (3)$$

где γT_e и C_l – теплоемкости электронной и фононной подсистем, K_e и K_l – теплопроводность электронного газа и решетки, соответственно, g – коэффициент связывания, характеризующий передачу энергии от нагретых электронов фононам решетки, $S(r,t)$ – член, характеризующий источник нагрева. Пространственный профиль $S(r,t)$ соответствовал рассчитанной поглощенной энергии на длине волны 800 нм, а временная зависимость повторяла огибающую импульса накачки. Система уравнений (3) позволяет найти электронную T_e и решеточную T_l температуры в различные моменты времени в разных точках пространства. Константы γ, K_e, g, C_l, K_l были подобраны так, чтобы наилучшим образом аппроксимировать полученные в работе [37] временные зависимости дифференциального отражения. Для численного решения системы (3) также использовался программный пакет Comsol Multiphysics.

Полученное распределение температуры электронного газа в образце на задержке $\tau = 500$ фс, соответствующей времени достижения максимума T_e, показано на верхней части рис. 2. Видно, что исследуемый магнитоплазмонный кристалл нагревается неравномерно: тепло локализуется в канавках

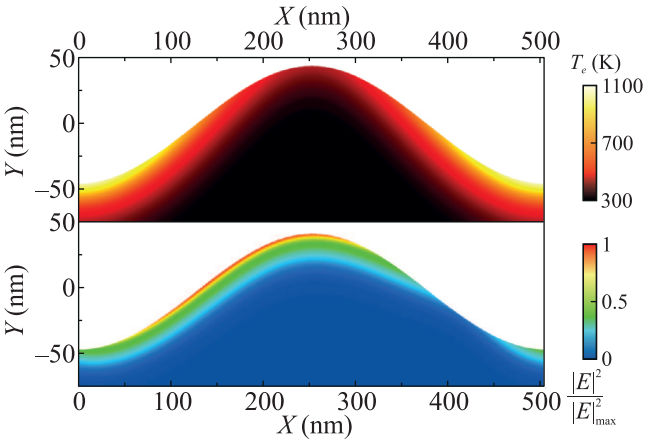

Рис. 2. (Цветной онлайн) Верхняя панель: рассчитанное в рамках двухтемпературной модели распределение электронных температур на одном периоде образца спустя $\tau = 500$ фс после прихода импульса накачки (800 нм). Нижняя панель: распределение квадрата электрической компоненты ближнего поля зондирующего импульса в образце на длине волны возбуждения поверхностного плазмона (617 нм), нормированное на максимум

решетки, в то время как ее вершины остаются холодными. Температура в более нагретых областях оказывается выше, чем в тонких пленках при соизмеримой по величине плотности энергии импульса накачки [1], однако температура в более холодных областях (вершинах) будет ниже. В силу того, что размагничивание следует за температурой, можно утверждать, что в отличие от гладкой пленки в случае решетки образуется неравномерный профиль намагниченности. В этом случае важную роль начинает играть пространственное распределение ближнего поля импульса зондирования, определяемое локализацией поверхностного плазмона и представленное на нижней части рис. 2 для длины волны плазмонного возбуждения. Область зондирования лишь частично перекрывается с областью повышенного нагрева. Это и приводит к снижению эффекта Керра на 50 %, что сопоставимо по величине с эффектом в тонких пленках при близких значениях плотности энергии [1, 11, 43].

В заключение, в работе наблюдается сверхбыстрое уменьшение экваториального магнитооптического эффекта Керра на 50 % в спектральном диапазоне возбуждения поверхностных плазмонов в полностью никелевом магнитоплазмонном кристалле при плотности энергии размагничивающего фемтосекундного импульса 6 мДж/см^2. Исходя из литературных данных, такие значения для объемных образцов ожидались при плотностях энергии в несколько раз больше [8, 45]. Для объяснения этой особенности были проведены расчеты пространственных распределений ближнего поля зондирующего импульса и электронной температуры в образце. Наблюдаемое уменьшение ЭМОЭК объясняется не снижением намагниченности всей поверхности на 50 %, а ее пространственно неоднородным нагревом. Канавки решетки нагреваются сильнее поверхности тонких плоских пленок в аналогичных условиях. В результате размагничивается только часть поверхности образца. Таким образом, в наноструктурированных системах макроскопический сверхбыстрый магнитооптический отклик связан с намагниченностью сложным образом и требует дополнительной интерпретации в каждом случае.

И. А. Новиков и М. А. Кирьянов являются стипендиатами Фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”. Для характеризации образцов использовалось оборудование, предоставленное по Программе развития МГУ (соглашение # 102 от 14.02.2022).

Работа поддержана грантом Российского научного фонда # 22-22-00856.

1. E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996).

2. M. Pankratova, I. P Miranda, D. Thonig, M. Pereiro, E. Sjöqvist, A. Delin, O. Eriksson, and A. Bergman. Phys. Rev. B **106**, 174407 (2022).
3. B. Mueller and B. Rethfeld. Phys. Rev. B **90**, 144420 (2014).
4. B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. Dalla Longa, and W. J. M. de Jonge, Phys. Rev. Lett. **95**, 267207 (2005).
5. K. Carva, M. Battiato, and P. M. Oppeneer, Phys. Rev. Lett. **107**, 207201 (2011).
6. Z. Zheng, Q. Zheng, and J. Zhao. Phys. Rev. B **105**, 085142 (2022).
7. U. Atxitia and O. Chubykalo-Fesenko. Phys. Rev. B **84**, 144414 (2011).
8. K. Krieger, J. Dewhurst, P. Elliott, S. Sharma, and E. Gross, J. Chem. Theory Comput. **11**, 4870 (2015).
9. S. R. Acharya, V. Turkowski, G. Zhang, and T. S. Rahman, Phys. Rev. Lett. **125**, 017202 (2020).
10. H. Hamamera, F. S. M. Guimar aes, M. dos Santos Dias, and S. Lounis, Commun. Phys. **5**, 16 (2022).
11. A. Eschenlohr, M. Battiato, P. Maldonado, N. Pontius, T. Kachel, K. Holldack, R. Mitzner, A. Föhlisch, P. M. Oppeneer, and C. Stamm, Nat. Mater. **12**, 332 (2013).
12. G. Salvatella, R. Gort, K. Bühlmann, S. Däster, A. Vaterlaus, and Y. Acremann, Struct. Dyn. **3**, 055101 (2016).
13. K. Krieger, P. Elliott, T. Müller, N. Singh, J. Dewhurst, E. Gross, and S. Sharma, J. Phys. Condens. Matter **29**, 224001 (2017).
14. K. Kuiper, G. Malinowski, F. Dalla Longa, and B. Koopmans, J. Appl. Phys. **109**, 07D316 (2011).
15. Y. Kivshar, Nano Lett. **22**, 3513 (2022).
16. A. A. Popkova, I. M. Antropov, G. I. Tselikov, G. A. Ermolaev, I. Ozerov, R. V. Kirtaev, S. M. Novikov, A. B. Evlyukhin, A. V. Arsenin, V. O. Bessonov, V. S. Volkov, and A. A. Fedyanin, Laser Photonics Rev. **16**, 2100604 (2022).
17. Z. Sadrieva, K. Frizyuk, M. Petrov, Y. Kivshar, and A. Bogdanov, Phys. Rev. B, **100**, 115303 (2019).
18. А. М. Черняк, М. Г. Барсукова, А. С. Шорохов, А. И. Мусорин, А. А. Федянин, Письма в ЖЭТФ **111**, 40 (2020) [A. M. Chernyak, M. G. Barsukova, A. S. Shorokhov, A. I. Musorin, and A. A. Fedyanin, JETP Lett. **111**, 46 (2020)].
19. D. O. Ignatyeva, D. Karki, A. A. Voronov, M. A. Kozhaev, D. M. Krichevsky, A. I. Chernov, M. Levy, and V. I. Belotelov, Nat. Commun. **11**, 5487 (2020).
20. Д. А. Шилкин, А. А. Федянин, Письма в ЖЭТФ **115**, 157 (2022) [D. A. Shilkin and A. A. Fedyanin, JETP Lett. **115**, 136 (2022)].
21. B. I. Afinogenov, V. O. Bessonov, I. V. Soboleva, and A. A. Fedyanin, ACS Photonics **6**, 844 (2019).
22. K. A. Willets and R. P. van Duyne, Annu. Rev. Phys. Chem. **58**, 267 (2007).
23. N. Maccaferri, A. Gabbani, F. Pineider, T. Kaihara, T. Tapani, and P. Vavassori, Appl. Phys. Lett. **122**, 120502 (2023).
24. V. G. Kravets, A. V. Kabashin, W. L. Barnes, and A. N. Grigorenko, Chem. Rev. **118**, 5912 (2018).
25. A. I. Musorin, A. V. Chetvertukhin, T. V. Dolgova, H. Uchida, M. Inoue, B. S. Luk'yanchuk, and A. A. Fedyanin, Appl. Phys. Lett. **115**, 151102 (2019).
26. W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen, Nature **424**, 824 (2003).
27. M. R. Shcherbakov, P. P. Vabishchevich, A. Yu. Frolov, T. V. Dolgova, and A. A. Fedyanin, Phys. Rev. B **90**, 201405 (2014).
28. D. V. Murzin, A. Yu. Frolov, K. A. Mamian, V. K. Belyaev, A. A. Fedyanin, and V. V. Rodionova, Opt. Mater. Express **13**, 171 (2023).
29. A. N. Koya, M. Romanelli, J. Kuttruff et al. (Collaboration), Appl. Phys. Rev. **10**, 021318 (2023).
30. D. Ryabov, O. Pashina, G. Zograf, S. Makarov, and M. Petrov, Nanophotonics **11**, 3981 (2022).
31. G. Zograf, K. Koshelev, A. Zalogina, V. Korolev, R. Hollinger, D.-Y. Choi, M. Zuerch, C. Spielmann, B. Luther-Davies, D. Kartashov, S. V. Makarov, S. S. Kruk, and Y. Kivshar, ACS Photonics **9**, 567 (2022).
32. M. A. Kiryanov, A. Yu. Frolov, I. A. Novikov, P. A. Kipp, P. K. Nurgalieva, V. V. Popov, A. A. Ezhov, T. V. Dolgova, and A. A. Fedyanin, APL Photonics **7**, 026104 (2022).
33. V. K. Belyaev, V. V. Rodionova, A. A. Grunin, M. Inoue, and A. A. Fedyanin, Sci. Rep. **10**, 7133 (2020).
34. A. Yu. Frolov, M. R. Shcherbakov, and A. A. Fedyanin, Phys. Rev. B **101**, 045409 (2020).
35. M. Kataja, F. Freire Fernandez, J. Witteveen, T. Hakala, P. Törmä, and S. Dijken, Appl. Phys. Lett. **112**, 072406 (2017).
36. H. Xu, G. Hajisalem, G. Steeves, R. Gordon, and B.-C. Choi, Sci. Rep. **5**, 15933 (2015).
37. I. A. Novikov, M. A. Kiryanov, P. K. Nurgalieva, A. Yu. Frolov, V. V. Popov, T. V. Dolgova, and A. A. Fedyanin, Nano Lett. **20**, 8615 (2020).
38. M. Taghinejad, H. Taghinejad, Z. Xu, K.-T. Lee, S. P. Rodrigues, J. Yan, A. Adibi, T. Lian, and W. Cai, Nano Lett. **18**, 5544 (2018).
39. A. Schirato, M. Maiuri, A. Toma, S. Fugattini, R. Proietti Zaccaria, P. Laporta, P. Nordlander, G. Cerullo, A. Alabastri, and G. Della Valle, Nat. Photon. **14**, 723 (2020).
40. G. V. Hartland, Chem. Rev. **111**, 3858 (2011).

41. М. А. Кирьянов, Г. С. Останин, Т. В. Долгова, М. Иноуэ, А. А. Федянин, Письма в ЖЭТФ **117**, 201 (2023) [M. A. Kiryanov, G. S. Ostanin, T. V. Dolgova, M. Inoue, and A. A. Fedyanin, JETP Lett. **117**, 196 (2023)].
42. C. Voisin, D. Christofilos, N. Del Fatti, F. Vallée, B. Prével, E. Cottancin, J. Lermé, M. Pellarin, and M. Broyer, Phys. Rev. Lett. **85**, 2200 (2000).
43. T. Roth, A. J. Schellekens, S. Alebrand, O. Schmitt, D. Steil, B. Koopmans, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann, Phys. Rev. X **2**, 021006 (2012).
44. K. Krieger, P. Elliott, T. Müller, N. Singh, J. Dewhurst, E. Gross, and S. Sharma, J. Phys. Condens. Matter **29**, 224001 (2017).
45. U. Bierbrauer, S. T. Weber, D. Schummer, M. Barkowski, A.-K. Mahro, S. Mathias, H. C. Schneider, B. Stadtmüller, M. Aeschlimann, and B. Rethfeld, J. Phys., Condens. Matter **29**, 244002 (2017).
46. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, ЖЭТФ **66**, 776 (1974).