Особенности обратного эффекта Фарадея, возникающего в пленках феррита-граната при воздействии фемтосекундными лазерными импульсами

М. А. Кожаев^{*a,b*1}, А. И. Чернов^{*a,b*}, И. В. Савочкин^{*c*}, А. Н. Кузьмичев^{*a,d*}, А. К. Звездин^{*a,b,d*}, В. И. Белотелов^{*a,c*} ^{*a*} Российский квантовый центр, 143025 Москва, Россия

^bИнститут общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

^сМосковский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^d Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 18 октября 2016 г. После переработки 15 ноября 2016 г.

При экспериментальном исследовании обратного эффекта Фарадея, возникающего в пленках феррита-граната под действием фемтосекундных лазерных импульсов, обнаружена нелинейная зависимость наблюдаемого эффекта от энергии импульсов оптической накачки. Это не согласуется с представлением, что обратный эффект Фарадея линеен по энергии накачки. Так, при использовании импульсов накачки с центральной длиной волны 650 нм и плотностью энергии 1 мДж/см² отклонение от линейного закона составляет около 50%. Анализ экспериментальных данных показал, что наблюдаемое явление связано с тем, что оптически индуцируемая нормальная компонента намагниченности определяется не только магнитным полем обратного эффекта Фарадея, но и зависит от уменьшения прецессирующей намагниченности, вызванного фемтосекундным электромагнитным полем.

DOI: 10.7868/S0370274X16240036

В настоящее время большой интерес вызывают исследования методов оптического воздействия на состояние намагниченности магнитоупорядоченных материалов [1,2]. При этом обычно используют методику "накачка-зондирование" ("pump-probe technique") [3–10], в которой магнитный материал облучают интенсивными фемтосекундными лазерными импульсами (импульсы накачки) и наблюдают за вызванными ими изменениями намагниченности с помощью импульсов существенно меньшей интенсивности (импульсы зондирования), следующими за импульсами накачки с некоторой временной задержкой. Оптические импульсы накачки могут привести к сверхбыстрому размагничиванию, перемагничиванию образца, либо могут возбудить прецессию намагниченности во внешнем поле.

Существует несколько причин, ответственных за эти явления: локальный нагрев образца, фотоиндуцированная магнитная анизотропия, обратные магнитооптические эффекты [3–22]. В случае, когда частота импульсов накачки находится в области прозрачности материала, основную роль играют обратнаиболее известен обратный эффект Фарадея (ОЭФ) [11, 12]. Упомянутый ОЭФ может быть описан в терминах

дополнительного магнитного поля H_F , которое действует на область образца, облучаемую лазерными импульсами, во время прохождения импульсов через образец [3]:

ные магнитооптические эффекты, среди которых

$$\mathbf{H}_F = -ia\frac{\varepsilon_0}{\mu_0} [\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*], \qquad (1)$$

где a – коэффициент пропорциональности в выражении для тензора диэлектрической проницаемости магнетика, учитывающий магнитооптическое взаимодействие $\varepsilon_{ij} = \varepsilon \delta_{ij} + iae_{ijk}M_k, \, \delta_{ij}$ – символ Кронекера, e_{ijk} – символ Леви–Чивиты, M_k – вектор намагниченности. Данная формула выведена из термодинамических принципов для недиссипативной среды. Эффективное магнитное поле Фарадея возникает и при квантовомеханическом рассмотрении, во втором порядке теории возмущений по амплитуде электромагнитного поля [12].

Экспериментально ОЭФ наблюдали около 50 лет назад в парамагнетиках [13] и в плазме [14, 15]. При этом для детектирования возникающего за счет ОЭФ

¹⁾e-mail: mikhailkozhaev@gmail.com

магнитного поля использовали катушки индуктивности. Однако ОЭФ в магнитоупорядоченных материалах был сравнительно недавно впервые обнаружен с помощью техники накачка-зондирование, используя фемтосекундные лазерные импульсы [3]. Импульсы лазерного излучения продолжительностью 200 фс были сфокусированы в пятно диаметром 200 мкм на образец ортоферрита диспрозия DyFeO₃, в результате наблюдалась прецессия намагниченности, вызванная этими импульсами. Работа вызвала большой интерес и в последствии были проведены эксперименты, демонстрирующие возбуждение динамики намагниченности фемтосекундными лазерными импульсами за счет ОЭФ в редкоземельных ферритахгранатах [4–7], в ферримагнитных сплавах GdFeCo [8], а также в парамагнитных кристаллах диспрозийалюминиевого Dy₃Al₅O₁₂ [9] и тербий-галлиевого Tb₃Ga₅O₁₂ [10] гранатов.

В ряде работ уравнение (1) было использовано для оценки напряженности эффективного магнитного поля, возникающего при ОЭФ [3,5]. Оказалось, что значение индукции такого поля может достигать нескольких тесла. Заметим, что в пионерских работах Питаевского и Першана [11, 12] ОЭФ определялся намагниченностью парамагнетика, индуцированной световой волной вдоль ее волнового вектора \mathbf{k} ($\mathbf{M} \| \mathbf{k}$). В случае ферромагнетиков намагниченность постоянна по величине, но может изменяться по направлению. В насыщающем магнитном поле в плоскости пленки домены исчезают и намагниченность становится однородной по всему образцу. При этом нормальная компонента намагниченности М_n $(\mathbf{M_n} \| \mathbf{k})$, соответствующая ОЭФ, определяется действием эффективного магнитного поля \mathbf{H}_F , под влиянием которого спины выходят из плоскости. Поскольку, согласно (1), напряженность \mathbf{H}_F пропорциональна энергии падающего излучения, то и $\mathbf{M}_{\mathbf{n}}$ также должна линейно расти при этом. Однако детального изучения зависимости наблюдаемого эффекта от энергии падающего излучения до сих пор проведено не было.

В данной работе выполнено экспериментальное исследование этого вопроса на примере пленок феррита-граната. Обнаружено, что величина индуцируемой нормальной компоненты намагниченности зависит от энергии оптической накачки нелинейно. Это может быть связано с тем, что $\mathbf{M_n}$ определяется не только действием эффективного магнитного поля, но и уменьшением абсолютного значения намагниченности пленки δM .

Эксперименты проведены на монокристаллической пленке редкоземельного феррита-граната с замещением висмутом, выращенной методом жидкофазной эпитаксии на подложке гадолинийкристаллографической галлиевого граната с ориентацией (111). Состав пленки получен с помощью электронно-зондового микроанализа: $(Bi_{0.9}Lu_{1.4}Tm_{0.4}Sm_{0.1})(Fe_{4.6}Ga_{0.4})O_{12}.$ Толщина пленки L = 5.0 мкм. Измерение петель гистерезиса для поля в плоскости и перпендикулярно плоскости пленки позволило определить намагниченность насыщения $4\pi M_s \sim 850\,\Gamma c$ и константу кубической анизотропии $K_U = 4.0 \cdot 10^4 \, {\rm spr/cm^3}$ магнитной пленки.

Динамика намагниченности возбуждалась фемтосекундными лазерными импульсами накачки длительностью $\Delta t = 200 \, \text{фc}$ (лазер Newport Mai Tai HP Ti:Sapphire вместе с параметрическим генератором Spectra-Physics Inspire Auto 100; частота повторения импульсов 80 МГц). Импульсы накачки имели круговую поляризацию и падали на образец под углом 17°.

Прецессия намагниченности во внешнем магнитном поле наблюдалась при помощи линейно поляризованных импульсов зондирования, падающих на образец под углом 17° в плоскости, ортогональной к плоскости падения импульсов накачки. Задержка по времени между импульсами накачки и зондирования изменялась в пределах от -0.3 нс до 2.5 нс. В результате осцилляций намагниченности меняется проекция намагниченности на волновой вектор зондирующего импульса, что регистрируется по изменению угла Фарадея Ψ зондирующего импульса.

Импульсы накачки и зондирования имели центральную длину волны 650 нм и 820 нм и были сфокусированы на поверхности пленки в пятна диаметром около 7 мкм. Интенсивность зондирующих импульсов была на порядок меньше интенсивности импульсов накачки, что позволило пренебречь их влиянием на намагниченность образца.

Модулируя поляризацию импульса накачки, измеряли разницу между сигналами, возникающими при воздействии на образец импульсов с левой и правой (σ^+ и σ^-) круговыми поляризациями. Внешнее магнитное поле было приложено в плоскости образца и в плоскости падения импульсов накачки (рис. 1).

Край зоны поглощения феррита-граната находится в районе $\lambda = 530$ нм, поэтому коэффициент пропускания образца монотонно возрастает с увеличением длины волны (рис. 2). Угол Фарадея, наоборот, убывает с ростом длины волны: $\Psi_s = 3.1^{\circ}$ при $\lambda = 650$ нм (длина волны импульса накачки), $\Psi_s = 1.3^{\circ}$ при $\lambda = 820$ нм (длина волны импульса зондирования). Спектры пропускания и угла Фарадея



Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема эксперимента. Поверхность образца лежит в плоскости XY. Внешнее магнитное поле направлено вдоль оси Y. Импульсы накачки и зондирования падают на образец во взаимно перпендикулярных плоскостях YZ и XZ соответственно



Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры коэффициента оптического пропускания и угла Фарадея исследуемого образца. Угол Фарадея измерен при приложении внешнего магнитного поля величиной 300 мТл по нормали к образцу.

позволяют определить компоненты тензора диэлектрической проницаемости материала на длине волны импульса накачки ($\lambda = 650$ нм): $\varepsilon = 5.8 + 0.04i$, $a = 1.04 \cdot 10^{-4} \, \mathrm{S}^{-1}$.

Во время прохождения лазерного импульса в магнитном образце индуцируется эффективное магнитное поле, которое направлено вдоль волнового вектора импульса накачки. Это поле отклоняет намагниченность из положения равновесия и приводит к прецессии намагниченности относительно ее положения равновесия с углом прецессии Θ и частотой $\omega = \gamma \sqrt{H(H+H_a)}$, γ – гиромагнитное отношение, $H_a = 4\pi M_s - 2K_U/M_s$. Из-за диссипации,

Письма в ЖЭТФ том 104 вып. 11-12 2016

определяемой коэффициентом затухания Гильберта α , угол прецессии экспоненциально убывает со временем: $\Theta(t) = \Theta_0 e^{-t/\tau}$, где Θ_0 – начальный угол прецессии, τ – время затухания. Прецессия приводит к изменению проекции намагниченности на волновой вектор **k** зондирующего импульса $M\theta$, где $\theta = \frac{\pi}{2} - \theta_1$, θ_1 – угол между намагниченностью и вектором **k**, $\theta = \Theta \sin \omega t$. В результате наблюдаются осцилляции угла Фарадея Ψ (рис. 3). Поскольку



Рис. 3. (Цветной онлайн) Прецессия намагниченности при возбуждении импульсами накачки $\lambda = 650$ нм с различной плотностью энергии J = 0.11-0.99 мДж/см². Внешнее магнитное поле H = 89 мТл. Импульс накачки воздействует на образец в момент времени t = 0

 $\Psi = \pi a M L \theta / \lambda \sqrt{\varepsilon}$ (при $\theta \ll 1$ и пренебрегая интерференцией из-за отражений света от граней пленки) [23], то наблюдаемый сигнал определяется затухающей гармонической функцией: $\Psi = \Psi_0 e^{-t/\tau} \sin \omega t$ с амплитудой $\Psi_0 = \frac{\pi a M L \Theta_0}{\lambda \sqrt{\varepsilon}}$. Аппроксимация сигнала затухающим синусом показана сплошными черными кривыми на рис. 3. Используя угол Фарадея Ψ_s при насыщении намагниченности пленки по нормали к поверхности, получим

$$\Psi_0 = \frac{M\Theta_0}{M_s} \Psi_s. \tag{2}$$

С другой стороны, наблюдаемый начальный угол прецессии определяется средней по толщине пленки напряженностью магнитного поля ОЭФ $\langle H_F \rangle$:

$$\Theta_0 = \gamma \left(1 + \frac{H_a}{H} \right)^{-1/2} \langle H_F \rangle \Delta t.$$
 (3)

Согласно (1), для циркулярно-поляризованного света $\langle H_F \rangle = a \frac{\varepsilon_0}{\mu_0} \langle |E|^2 \rangle$, где $\langle |E|^2 \rangle$ – средний по толщине

квадрат амплитуды напряженности электрического поля в пленке, который пропорционален амплитуде поля падающего излучения E_0 , $\langle |E|^2 \rangle = \kappa E_0^2$. Коэффициент κ определяется из формулы Френеля для пленки конечной толщины [24]. Учитывая (1)–(3) и выражение для поверхностной плотности энергии падающего излучения $J = \frac{1}{2}c\varepsilon_0^2\Delta t$, получаем

$$\Psi_0 = \frac{2a\gamma}{c\mu_0} \frac{\Psi_s}{M_s} M\kappa \left(1 + \frac{H_a}{H}\right)^{-1/2} J.$$
(4)

При этом $M = M_s$. Таким образом, амплитуда наблюдаемого сигнала прямо пропорциональна плотности энергии падающего излучения.

Вместе с тем, полученная из эксперимента амплитуда угла Фарадея зависит от мощности нелинейно (красные круги на рис. 4). Отклонение от пря-



Рис. 4. (Цветной онлайн) Экспериментальная (красные круги) и теоретическая (сплошная линия) зависимости эффекта Фарадея от плотности энергии накачки. Внешнее магнитное поле H = 89 мТл. Наилучшая аппроксимация экспериментальных данных получена при b = 3300 А · м/Дж

мой пропорциональности становится более заметным с ростом мощности.

Наблюдаемое явление может быть объяснено уменьшением намагниченности δM , участвующей в прецессии. В результате, намагниченность M, входящая в выражение для наблюдаемого угла Фарадея (4), отличается от намагниченности насыщения: $M = M_s - \delta M$. Величина δM зависит от напряженности эффективного магнитного поля ОЭФ и, следовательно, от энергии падающего излучения: $\delta M = \delta M(J)$. Разлагая эту зависимость в ряд по степеням J, ограничимся линейным приближением $\delta M =$

= *bJ*. Это приводит к уточненной зависимости амплитуды угла Фарадея от энергии накачки:

$$\Psi_0 = \frac{2a\gamma}{c\mu_0} \Psi_s \kappa \left(1 + \frac{H_a}{H}\right)^{-1/2} \left(J - \frac{b}{M_s} J^2\right).$$
(5)

Аппроксимация экспериментальной зависимости (5), в которой $b = 3300 \,\mathrm{A\cdot m}/\mathrm{Д}$ ж, дает хорошее согласие с экспериментом.

Возможны несколько причин уменьшения намагниченности, среди которых – явление оптически индуцированного подавления магнитного порядка [25, 26] и генерация магнитостатических спиновых волн (MCB) [4, 27, 28].

Поскольку длина волны оптической накачки $\lambda = 650$ нм находится вблизи зоны поглощения материала, то механизм оптически индуцированной хаотизации и подавления магнитного порядка может в данном случае также играть заметную роль.

Наряду с этим, возможны и другие механизмы уменьшения намагниченности. Возбуждаемые МСВ уносят часть энергии и, кроме того, приводят к неоднородному распределению намагниченности в пространстве. Генерация МСВ в данном эксперименте подтверждается наблюдением прецессии намагниченности на некотором расстоянии от области оптического воздействия (рис. 5).



Рис. 5. (Цветной онлайн) Прецессия намагниченности на различных расстояниях Δy от области воздействия импульсов накачки. Луч зондирования смещен относительно луча накачки в направлении внешнего магнитного поля. Импульс накачки воздействует на образец в момент времени t = 0. Внешнее магнитное поле $H = 89 \,\mathrm{mTn}$

Для этого луч зондирования смещали относительно луча накачки. При этом смещении амплитуда осцилляций уменьшается, тем не менее, МСВ прослеживаются до расстояния 30 мкм.

Таким образом, в данной работе показано, что при возбуждении фемтосекундными импульсами величина наблюдаемого ОЭФ нелинейно зависит от плотности энергии накачки. Это может быть объяснено уменьшением намагниченности, участвующей в прецессии. При этом удается хорошо описать наблюдаемую зависимость магнитооптического сигнала от энергии накачки. Возможными причинами уменьшения намагниченности являются оптически индуцированное нарушение магнитного порядка, а также генерация спиновых волн.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант #14-32-00010). Мы признательны к.ф.-м.н. Н.Е. Хохлову за измерение коэффициента пропускания и угла Фарадея исследуемого образца.

- A. Kirilyuk, A.V. Kimel, and Th. Rasing, Rev. Mod. Phys. 82, 2731 (2010).
- A.V. Chumak, V.I. Vasyuchka, A.A. Serga, and B. Hillebrands, Nature Phys. 11, 453 (2015).
- A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, and Th. Rasing, Nature 435, 655 (2005).
- T. Satoh, Yu. Terui, R. Moriya, B. A. Ivanov, K. Ando, E. Saitoh, T. Shimura, and K. Kuroda, Nat. Photonics.
 6, 662 (2012).
- F. Hansteen, A. Kimel, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, Phys. Rev. B 73, 014421 (2006).
- A. H. M. Reid, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, J. F. Gregg, and Th. Rasing, Phys. Rev. Lett. **105**, 107402 (2010).
- M. Deb, M. Vomir, J.-L. Rehspringer, and J.-Y. Bigot, Appl. Phys. Lett. **107**, 252404 (2015).
- C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing, Phys. Rev. Lett. 99, 047601 (2007).
- A. H. M. Reid, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, J. F. Greeg, Th. Rasing, Phys. Rev. B 81, 104404 (2010).

- R. V. Mikhaylovskiy, E. Hendry, and V. V. Kruglyak, Phys. Rev. B 86, 100405(R) (2012).
- 11. L. P. Pitaevskii, Sov. Phys. JETP 12(5), 1008 (1961).
- 12. P.S. Pershan, Phys. Rev. 130, 919 (1963).
- J. P. van der Ziel, P.S. Pershan, and L.D. Malmstrom, Phys. Rev. Lett. 15, 190 (1965).
- J. Deschamps, M. Fitaire, and M. Lagoutte, Phys. Rev. Lett. 25, 001330 (1970).
- Y. Horovitz, S. Eliezer, A. Ludmirsky, Z. Henis, E. Moshe, R. Shpitalnik, and B. Arad, Phys. Rev. Lett. 78, 001707 (1997).
- M. J. Hurben and C. E. Patton, J. Magn. Magn. Mater. 163, 39 (1996).
- B. Koopmans, M. van Kampen, J.T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge, Phys. Rev. Lett. 85, 844 (2000).
- E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996).
- A. Stupakiewicz, A. Maziewski, I. Davidenko, and V. Zablotskii, Phys. Rev. B 64, 64405 (2001).
- F. Atoneche, A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, A. Stupakiewicz, A. Mazeiewski, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, Phys. Rev. B 81, 214440 (2010).
- A. Stupakiewicz, K. Szerenos, D. Afanasiev, A. Kirilyuk, and A. A. Kimel, arXiv:1609.05223.
- V.I. Belotelov and A.K. Zvezdin, Phys. Rev. B 86, 155133 (2012).
- 23. А.К. Звездин, В.А. Котов, Магнитооптика тонких пленок, Наука, М. (1988), с. 17.
- 24. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, М. (1973), с. 57.
- E. Beaurepaire, G. M. Turner, S. M. Harrel, M. C. Beard, J.-Y. Bigot, and C. A. Schmuttenmaer, Appl. Phys. Lett. 84, 3465 (2004).
- E. Beaurepaire, M. Daunois, and J.-Y. Bigot, Phys. Rev. Lett. 76, 4250 (1996).
- А. И. Чернов, М. А. Кожаев, П. М. Ветошко, Д. В. Додонов, А. Р. Прокопов, А. Г. Шумилов, А. Н. Шапошников, В. Н. Бержанский, А. К. Звездин, В. И. Белотелов, ФТТ 58, 1093 (2016).
- A. I. Chernov, M. A. Kozhaev, D. V. Dodonov, D. V. Dodonov, P. M. Vetoshko, A. K. Zvezdin, V. I. Belov, Opt. Lett. (направлена в печать).