

Сверхбыстрый эффект Фарадея и динамика фазового перехода антиферромагнетик – парамагнетик в FeVO_3

А. В. Кимель¹⁾, Р. В. Писарев, Дж. Холфелд⁺²⁾, Т. Разинг^{+ 2)}

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

⁺Research Institute for Materials, University of Nijmegen, 6525 ED Nijmegen, Netherlands

Поступила в редакцию 5 апреля 2002 г.

Метод оптической накачки и зондирования с использованием сверхкоротких лазерных импульсов с энергией фотонов 1.55 эВ применен к изучению динамики фазового перехода антиферромагнетик – парамагнетик в FeVO_3 . Измерялся магнитооптический эффект Фарадея с временным разрешением 100 фс и наблюдалось изменение временного поведения сигнала в зависимости от температуры образца. Показано, что скорость фотоиндуцированного фазового перехода ограничена скоростью фонон-магнонного взаимодействия с характерным временем 700 пс. Субпикосекундная динамика эффекта Фарадея не связана с разрушением магнитного порядка, а обусловлена фотовозбуждением и рекомбинацией электронов.

PACS: 42.65.Re, 75.50.Ee, 75.30.Kz

Изобретение лазеров, способных генерировать импульсы длительностью 100 фс и менее, позволило начать исследования сверхбыстрых процессов в подсистемах электронов, фононов и спинов в твердом теле. Уже в течение длительного времени методы сверхбыстрой спектроскопии успешно применяются для изучения динамики фотоиндуцированной намагниченности и других неравновесных процессов в полупроводниках [1]. Однако исследования сверхбыстрой динамики неравновесных процессов в магнитоупорядоченных средах, где фотовозбуждение способно изменить или даже разрушить существующий магнитный порядок, начались относительно недавно и пока остаются единичными. Одна из первых работ, в которой была исследована скорость разрушения магнитного порядка, была посвящена изучению ферромагнитного никеля [2]. В ней был сделан вывод, что характерное время нагрева спиновой подсистемы много больше, чем 10 пс. Однако вскоре было заявлено, что магнитным порядком в Ni можно управлять в субпикосекундном временном диапазоне [3, 4], и сделано предположение о наличии эффективного канала обмена энергией между электронами и магнонами [3]. Последующие работы как подтверждали возможность размагничивания в субпикосекундном временном диапазоне [5, 6], так и опровергали факт существования такого явления [7, 8]. Разрешить эти противоречия можно только в результате дальнейших исследований динамики размагничивания в дру-

гих группах материалов, где это явление еще не изучалось. Одним из перспективных объектов для таких исследований могут быть антиферромагнитные диэлектрики, где процесс размагничивания до сих пор не изучался. Теоретические работы показывают, что в таких материалах возможны времена размагничивания короче, чем 100 фс. Оценки были сделаны для антиферромагнитного диэлектрика оксида никеля, NiO, [9], однако экспериментальное исследование этого материала затруднено его сложной доменной структурой и отсутствием в нем линейных магнитооптических эффектов.

Для преодоления этих технических, а в какой-то степени и принципиальных трудностей, для исследований был выбран антиферромагнитный диэлектрик борат железа. Это соединение кристаллизуется в структуре типа кальцита с пространственной группой $R\bar{3}c$ и имеет температуру Нееля $T_N = 348.35$ K [10]. Его антиферромагнитное состояние характеризуется слабым ферромагнитным моментом, возникающим из-за разориентации спинов на угол около 1° градуса в плоскости (111). Наличие этого момента позволяет привести образец в однодоменное состояние с помощью небольшого внешнего магнитного поля. Следовательно, в таком не скомпенсированном антиферромагнетике для зондирования магнитного порядка можно использовать линейные магнитооптические эффекты.

Оптические свойства FeVO_3 в видимом диапазоне определяются локализованными d -состояниями иона Fe^{3+} в кристаллическом поле (рис.1а). В свободном ионе Fe^{3+} пять d -электронов формируют основное

¹⁾e-mail: kimel@pop.ioffe.rssi.ru

²⁾J. Hohlfeld, Th. Rasing

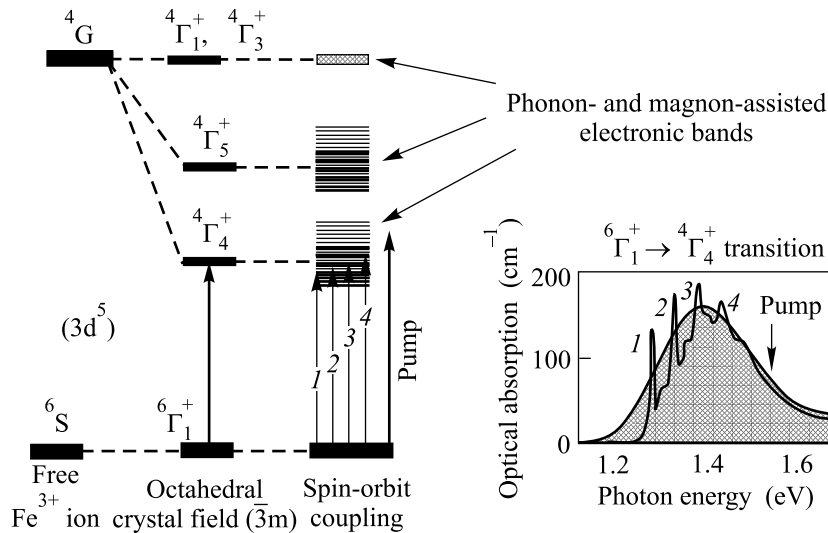


Рис.1. (а) Схема энергетических уровней иона Fe^{3+} в FeVO_3 и (б) спектр поглощения FeVO_3 при комнатной температуре (сплошная линия) и при температуре 20 К (пунктирная линия)

высокоспиновое состояние 6S ($L = 0, S = 5/2$), которое является орбитальным синглетом и спиновым секстетом. Ближайшим возбужденным состоянием является 4G . Под действием кристаллического поля октаэдрической симметрии возбужденное состояние расщепляется на два триплета ${}^4\Gamma_4^+$, ${}^4\Gamma_5^+$, дублет ${}^4\Gamma_3^+$ и синглет ${}^4\Gamma_1^+$. Вырождение по спину снимается из-за спин-орбитального и обменного взаимодействий. Переходы из основного в возбужденное состояние ${}^6\Gamma_1^+ \rightarrow {}^4\Gamma_4^+$ и ${}^6\Gamma_1^+ \rightarrow {}^4\Gamma_5^+$ запрещены в электродипольном приближении в соответствии с правилами отбора на изменение четности и спина. Тем не менее, при 20 К в области первого $d-d$ -перехода в спектре поглощения наблюдаются четыре интенсивных линии (рис.1б). При более высокой температуре это расщепление размывается из-за сильного электрон-фононного взаимодействия и электрон-фононных переходов.

В работе исследовался образец бората железа в виде пластинки толщиной 300 мкм с базисной плоскостью, перпендикулярной оптической оси. Измерения были выполнены по методу оптической накачки и зондирования при энергии фотонов 1.55 эВ и с использованием усиленных импульсов от титан-сапфирового лазера длительностью порядка 100 фс и частотой повторения 1 кГц (рис.2). Лучи накачки и зондирования были линейно поляризованы и сфокусированы в одну область на образце так, что их интенсивности были в соотношении 10:1, соответственно. Пространственная энергетическая экспозиция в пересчете на один импульс накачки составляла около 30 мДж/см². Углы падения на образец для лучей накачки и зондирования состав-

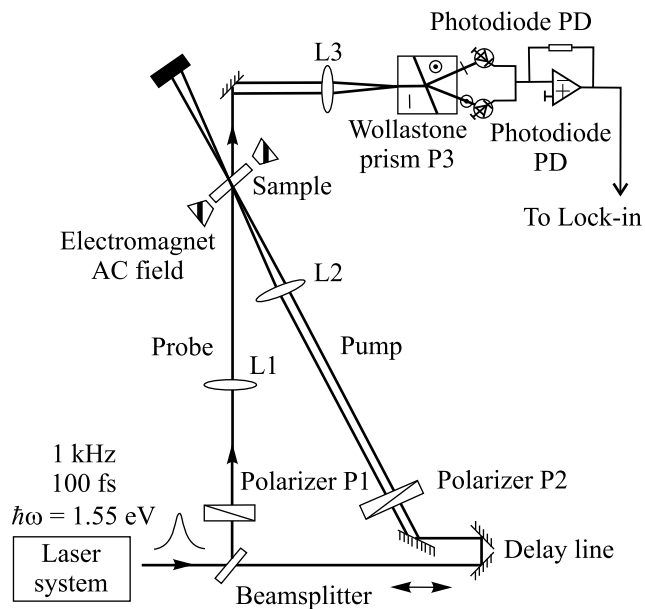


Рис.2. Схема экспериментальной установки

ляли 0 и 20°, соответственно. В такой геометрии в прошедшем через образец луче зондирования должен наблюдаться линейный магнитооптический эффект Фарадея, что проявляется в повороте плоскости поляризации света на угол

$$\alpha_F = VML \cos \theta, \quad (1)$$

где V – постоянная Верде, M – величина намагниченности образца, L – геометрическая длина пути света в образце, θ – угол между намагниченностью и волновым вектором света в образце. Для исследований динамики разрушения антиферромагнитного порядка в

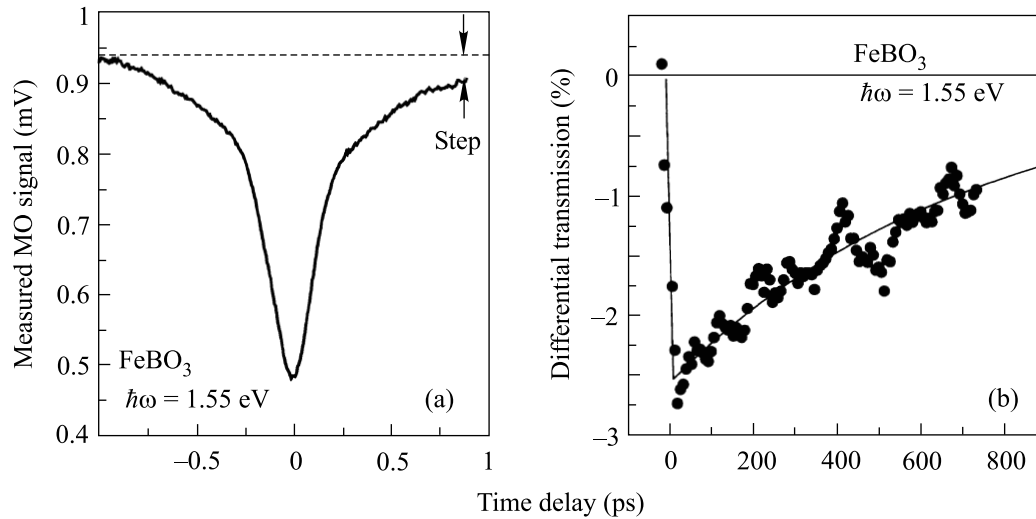


Рис.3. (а) Измеряемый сигнал с фотодетектора как функция времени в интервале до 1 пс и (б) временное поведение фотоиндуцированного дифференциального пропускания

FeBO₃ измерялся эффект Фарадея как функция времени задержки между импульсами накачки и зондирования. Образец был помещен в переменное магнитное поле с амплитудой около 100 Э и частотой 194 Гц. Поворот плоскости поляризации измерялся на этой частоте с чувствительностью не хуже, чем 0.2 мрад с использованием двухфотодиодного балансного детектора и техники синхронного детектирования. В эксперименте была предусмотрена возможность изменения температуры образца T_{bias} с помощью нагревателя. Поглощение света накачки приводило к статическому локальному перегреву образца на 10 К, что было учтено введением соответствующей поправки.

Как известно, оптическая накачка приводит к изменению не только магнитных, но и оптических свойств твердых тел. При исследовании динамики эффекта Фарадея необходимо измерять фотоиндуцированное изменение пропускания образца и использовать эти данные для калибровки. Временное поведение пропускания образца измерялось с помощью однофотодиодной схемы и с использованием амплитудной модуляции луча зондирования.

Временное поведение магнитооптического сигнала в коротком временном интервале показано на рис.3а. Сигнал характеризуется резким спадом во время перекрытия импульсов накачки и зондирования и последующим резким восстановлением. При времени задержки около 900 фс сигнал выходит на насыщение, причем величина сигнала на 2–3% меньше, чем до момента фотовозбуждения. Подобное поведение магнитооптического эффекта уже наблюдалось в ферритмагнетике Sr₂FeMoO₆ [5] и трактовалось как сверхбыстрое размагничивание среды. После допол-

нительных исследований мы установили, что такое поведение обусловлено фотоиндуцированными изменениями пропускания (см. рис.3б) и линейной зависимостью сигнала балансного детектора от интенсивности, а не динамикой намагниченности. Учет динамики пропускания при калибровке приводит к тому, что ступенчатый вклад исчезает, а пик во время перекрытия импульсов накачки и зондирования остается. В работе исследовалась интенсивностная зависимость этого пика. Данный сверхбыстрый отклик в эффекте Фарадея пропорционален пространственной энергетической экспозиции с коэффициентом $(8 \pm 0.6) \cdot 10^{-5}$ рад · см²/мДж.

Поведение фарадеевского вращения в длительном временном интервале показано на рис.4 для различных температур образца при постепенном приближении к точке Нееля. Динамические изменения эффекта Фарадея становятся тем более заметными, чем ближе температура образца к температуре Нееля. При температуре $T_{\text{bias}} = 346.5$ К сигнал резко убывает в течение 500 пс, а затем становится равным нулю.

Температурная зависимость эффекта Фарадея при отрицательном времени задержки показана на рис.5. Принимая во внимание пропорциональность эффекта Фарадея параметру порядка, температурную зависимость магнитооптического сигнала можно аппроксимировать функцией

$$\alpha_F(T) = \alpha_0(1 - T_s/T_N)^\beta, \quad (2)$$

где T_N – температура Нееля, β – критическая экспонента, T_s – магнетонная температура, которая определяет величину параметра порядка. В результа-

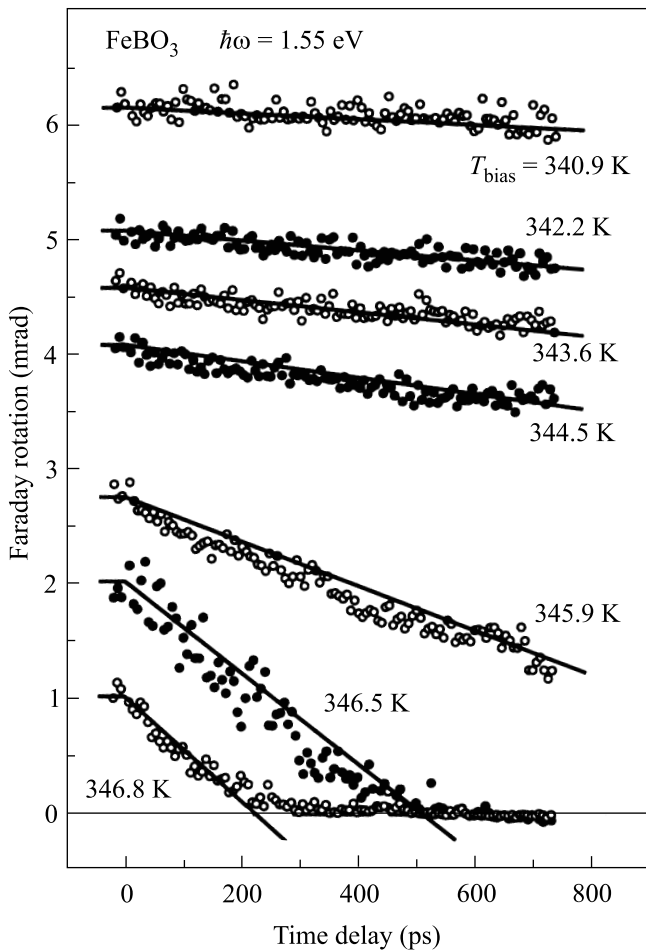


Рис.4. Временное поведение эффекта Фарадея в длительном временном интервале

те процедуры аппроксимации было получено $T_N = 347.0 \pm 0.1$ K и $\beta = 0.36 \pm 0.01$. Эти результаты находятся в хорошем соответствии с ранее опубликованными значениями $T_N = 348.35$ K и $\beta = 0.354$ [10]. Небольшую разницу в величинах температуры Нееля можно отнести к статическому нагреву образца лучом зондирования. Результат аппроксимации показан на рис.5 сплошной линией.

Температурная зависимость фарадеевского вращения при нулевом времени задержки показана на рис.5 светлыми точками. Экспериментальные данные аппроксимировались с помощью формулы (2) и использования приведенных выше значений β и T_N . Результат этой аппроксимации показан на рис.5 пунктирной линией. Подобие температурных зависимостей эффекта Фарадея при отрицательном и нулевом времени задержки указывает на то, что пик во время перекрытия импульсов не связан с разрушением магнитного порядка, а обусловлен переходами ионов Fe^{3+} в низкоспиновое $S = 3/2$ состояние и

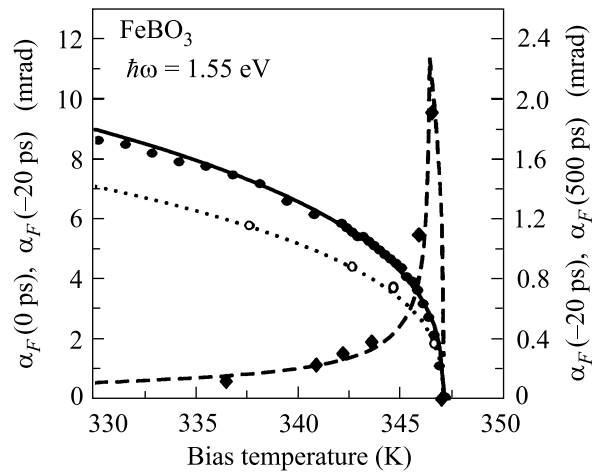


Рис.5. Эффект Фарадея при отрицательной временной задержке ($\alpha_F^{(0)}$, черные точки) и нулевой задержке ($\alpha_F^{(-20)}$, светлые точки) как функция температуры образца T_{bias} и результат аппроксимации экспериментальных данных по формуле (2) (сплошная и пунктирная линии, соответственно). Разность между величинами эффекта Фарадея $\alpha_F^{(-20)}$ и $\alpha_F^{(500)}$ при временах -20 пс и 500 пс показана ромбами вместе с рассчитанной зависимостью (штриховая линия)

фотоиндуцированным изменением постоянной Верде [11, 12].

На том же графике показана разность между магнитооптическими сигналами при временах задержки -20 и 500 пс. Видно, что эта разница возрастает при приближении к температуре Нееля. Качественно она воспроизводит форму производной эффекта Фарадея или параметра порядка по температуре. Совокупность всех этих факторов указывает на то, что фотоиндуцированное изменение магнитооптического сигнала связано с повышением магнитной температуры. Следовательно, при температуре образца $T_N = 346.5$ K и времени задержки 500 пс магнитная температура повышается до точки Нееля и антиферромагнитный порядок разрушается.

Температуру магнонов, которая динамически изменяется во времени, $T_s(t)$, можно представить в виде суммы статической температуры T_{bias} и динамической компоненты $\Delta T_s(t)$. Таким образом, каждую из динамических зависимостей эффекта Фарадея можно представить в виде динамической температуры $\Delta T_s(t)$. В исследованном температурном диапазоне T_{bias} зависимости $\Delta T_s(t)$ были идентичными в пределах ошибки эксперимента. Все зависимости $\Delta T_s(t)$ были усреднены и результат показан черными точками на рис.6. Поскольку усредненная динамическая компонента характеризуется монотон-

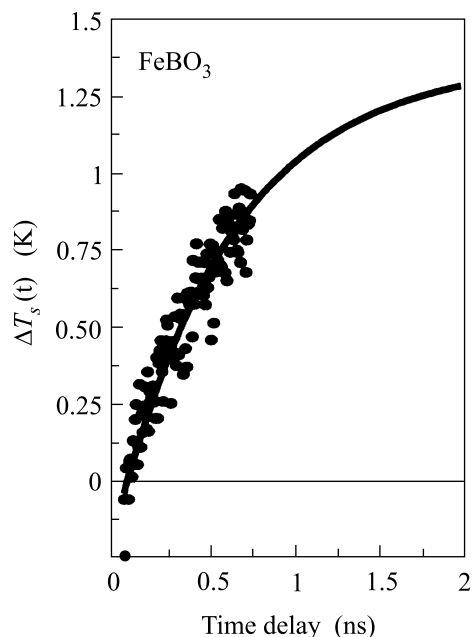


Рис.6. Динамическая компонента магнной температуры ΔT_s как функция времени. Сплошной линией показан результат аппроксимации по формуле (3)

ным возрастанием, эти данные были аппроксимированы формулой

$$\Delta T_s(t) = Tm_s(1 - \exp(-\frac{t}{\tau_T})), \quad (3)$$

где Tm_s – амплитуда динамической компоненты, τ_T – скорость нагрева. При аппроксимации все параметры были установлены как переменные и результат этой процедуры при $Tm_s = 1.4$ К и $\tau_T = 700$ пс показан на рис.6 сплошной линией.

Используя найденные параметры Tm_s , τ_T и α_0 , можно найти разность между магнитооптическими сигналами при временах -20 и 500 пс. Эта разность как функция температуры показана на рис.5 штриховой линией. Экспериментальные данные находятся в хорошем соответствии с расчетом. Это указывает на обоснованность утверждения, что релаксация магнитооптического сигнала обусловлена увеличением магнной температуры.

Спектр поглощения FeBO_3 показывает, что фотоны с энергией 1.55 эВ преимущественно возбуждают переход ${}^6\Gamma_1^+ \rightarrow {}^4\Gamma_4^+$. Вследствие этого возбуждения ионы железа переходят в низкоспиновое состояние $S = 3/2$, а потенциальная энергия электронов в среднем увеличивается на 1.4 эВ. Остаток энергии фотона передается решетке и магнитной системе за счет электрон-фононных и электрон-магнонных переходов. Из ширины линии вблизи 1.4 эВ в спектре поглощения FeBO_3 при комнатной температуре вид-

но, что время жизни ионов Fe^{3+} в низкоспиновом состоянии $S = 3/2$ не превышает 100 фс. Релаксация электронов в основное высокоспиновое состояние $S = 5/2$ может быть как излучательной, так и безызлучательной. В результате последнего процесса энергия электронов переходит в решетку.

Как правило, электрон-фононные переходы являются более интенсивными, чем электрон-магнонные переходы [13]. Следовательно, после фотовозбуждения температура фононов выше, чем температура магнонов, и система выведена из состояния равновесия. Далее эта разница начинает постепенно уменьшаться, а температура магнонов увеличиваться со скоростью фонон-магнонного взаимодействия.

Прежние исследования процесса перемангничивания бората железа с помощью импульсов СВЧ излучения показали, что решетка FeBO_3 изолирована от магнитной подсистемы в течение 16 нс после возбуждения [14]. Эта величина в 20 раз превышает время фонон-магнонного взаимодействия, которое наблюдается в наших экспериментах ($\tau_T = 700$ пс). Такая большая разница может быть связана с зависимостью энергии фонон-магнонного взаимодействия от волнового вектора магнонов. В экспериментах в СВЧ области спектра задействованы магноны только с малым или нулевым волновым вектором, а в нашем эксперименте важен обмен энергией с решеткой во всем магнном спектре. Таким образом, скорости фонон-магнонного взаимодействия, обнаруженные с помощью этих двух методик, могут существенно различаться.

В работе исследовалась динамика фотоиндуцированного фазового перехода антиферромагнетик-парамагнетик в FeBO_3 методом сверхбыстрой магнитооптической спектроскопии. В отличие от изучавшихся ранее металлического никеля и полуметаллического молибдата стронция фотовозбуждение бората железа не приводит к разогреву электронной подсистемы и за счет наиболее интенсивных электрон-фононных переходов вызывает повышение температуры фононов. Фотоиндуцированное разрушение магнитного порядка обусловлено повышением температуры магнонов вследствие обмена энергией с фотовозбужденной фононной подсистемой, а скорость фазового перехода ограничена скоростью фонон-магнонного взаимодействия. Анализ температурных зависимостей показал, что субпикосекундная динамика магнитооптического эффекта не связана с разрушением магнитного порядка, а обусловлена переходами ионов Fe^{3+} в возбужденное низкоспиновое $S = 3/2$ и рекомбинацией в основное высокоспиновое $S = 5/2$ состояния за время менее 100 фс.

Авторы благодарят В. Н. Гриднева, В. В. Павлова, F. Ventivegna, A. van Etteger и Н.-J. Weber за полезные дискуссии. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и программ Министерства Промышленности и Науки.

1. J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, Berlin, Springer, 1996.
2. М. Б. Агранат, С. И. Ашитков, А. Б. Грановский, Г. И. Рукман, *ЖЭТФ* **86**, 1376 (1984).
3. E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
4. J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, and K. H. Bennemann, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4861 (1997).
5. T. Kise, T. Ogasawara, M. Ashida et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1986 (2000).
6. W. Hübner and C. P. Zhang, *Phys. Rev.* **B58**, R5920 (1998).
7. М. Б. Агранат, С. И. Анисимов, С. И. Ашитков и др., Письма в *ЖЭТФ* **67**, 904 (1998).
8. B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 844 (2000).
9. O. Ney, M. Trzeciecki, and W. Hübner, *Special issue on Nonlinear Optics at Interfaces*, *Appl. Phys.* **B** (2002) (в печати).
10. *Numerical data and functional relationships*, Landolt-Börnstein, New Series, Group III, Vol. 16a, Springer-Verlag, Berlin, 1981.
11. J. Frey, R. Frey, and C. Flytzanis, *Phys. Rev.* **B45**, 4056 (1992).
12. С. Б. Борисов, И. Л. Любчанский, А. Д. Петренко, Г. И. Труш, *ЖЭТФ* **78**, 279 (1994).
13. В. В. Еременко, *Введение в оптическую спектроскопию магнетиков*, Киев, Наукова думка, 1997.
14. О. С. Колотов, А. П. Красножон, В. А. Погожев, *ФТТ* **40**, 305 (1998).