

铁磁薄膜中圆偏振光感应的瞬态磁光 Kerr 峰的物理起源*

陈达鑫 陈志峰 徐初东 赖天树[†]

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 物理科学与工程技术学院, 广州 510275)

(2010 年 1 月 20 日收到; 2010 年 2 月 4 日收到修改稿)

使用飞秒时间分辨抽运-探测磁光 Kerr 光谱技术, 实验研究了圆偏振光抽运面内磁化 FePt 和垂直磁化 GdFeCo 薄膜的磁化演化动力学, 发现在时间延迟零点处均出现瞬态 Kerr 峰. 分析了此 Kerr 峰的起源, 指出此瞬态 Kerr 峰与铁磁性无关, 可能起源于自由电子的顺磁磁化, 而顺磁磁化的外磁场来自圆偏振抽运光的逆 Faraday 效应. 基于顺磁磁化模型的计算结果支持此观点. 基于此观点, 逆 Faraday 效应感应的磁场脉冲宽度应该与激光脉冲宽度一致.

关键词: 圆偏振激光, 逆 Faraday 效应, 自由电子, 顺磁性

PACC: 7847, 7215H, 7550S, 7560

1. 引 言

Pershan 小组于 1965 年首次提出逆 Faraday 效应 (IFE) 的概念^[1], 并在掺 Eu^{2+} 的 CaF_2 , 一系列抗磁性玻璃甚至几种有机或无机液体中实验观察到这种效应^[1]. IFE 指圆偏振激光与介质作用时, 会在介质中产生沿光波矢或其相反方向的磁场, 其具体方向由激光的圆偏振旋向决定. 作者使用 30 ns 的激光脉冲与介质作用, 观察到同样宽度的磁场脉冲^[1]. 那么, 基于飞秒激光脉冲的 IFE 是否能产生飞秒磁脉冲呢? 这是一个近年来受到关注的问题, 因为飞秒磁脉冲在超快磁记录中具有重要的应用价值. 但此问题至今没有定论, 因为目前的实验技术不能直接时间分辨测量飞秒磁脉冲. 然而, 圆偏振飞秒激光与铁磁系统的相互作用已成为近年来的国际前沿研究热点, 并取得了重要进展. 实验上已在稀土-过渡金属非晶薄膜 GdFeCo 上实现了基于 IFE 的全光磁化翻转控制^[2-4]. 然而, 解释实验结果所进行的模拟计算中, 要假设有效磁场脉冲宽度是激光脉冲宽度的 2.5 倍以上^[4], 即 IFE 产生的磁场

脉冲宽度明显大于激光脉冲宽度, 才能解释实验结果. 此外, 作者提出 IFE 产生的磁脉冲宽度应该由飞秒激光与 Fe 薄膜作用产生的太赫兹电磁辐射的光谱来估算, 可能达几个皮秒^[4]. 但这些假设和观点均没有实验和理论证据. 所以, 飞秒激光的 IFE 产生的磁脉冲宽度至今仍然是未解决的问题. 另一方面, 已报道圆偏振光与铁磁金属 Ni 作用时, 会在零延时处感应瞬态磁光 Kerr 峰^[5,6], 而峰的正负性依赖于圆偏振光的旋向. Wilks 等^[5]将此峰宏观地归结为与 IFE 相关的磁致三阶非线性效应, 而 Zhang 和 George^[7]微观地解释为圆偏振光促使过渡金属中未完全淬灭的剩余轨道角动量与自旋角动量进一步耦合, 导致自旋角动量的额外增加. 但这种解释与两个实验现象不符: 一是瞬态 Kerr 峰之后没有额外的自旋弛豫; 二是这种瞬态 Kerr 峰在非铁磁性金属 Au, Ag, Cu^[8] 和 Al^[9] 薄膜上也观察到了, 表明此 Kerr 峰并不一定与铁磁体系中的自旋角动量相关. 因而, 此瞬态 Kerr 峰的起源有待进一步深入研究. 弄清它的起源, 或许有助于认识 IFE 产生的磁脉冲宽度.

本文研究了飞秒圆偏振光在 FePt 和 GdFeCo 薄

* 国家自然科学基金 (批准号: 60490295, 60678009, 10874247)、高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20090171110005) 和广东省自然科学基金 (批准号: 9151027501000077) 资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: stslts@mail.sysu.edu.cn

膜上感应的瞬态 Kerr 峰的起源, 提出它起源于 IFE 产生的磁场脉冲导致传导电子的顺磁磁化的观点. 进而, 推断飞秒激光 IFE 产生的磁脉冲宽度应该与飞秒激光脉冲宽度一致.

2. 实验描述

来自钛宝石激光放大器的脉宽约为 120—160 fs, 中心波长为 800 nm, 重复率为 1 kHz 的线偏振激光脉冲列, 通过一个标准的非共线抽运-探测实验装置, 输出抽运/探测功率比大于 40 的抽运和探测光. 其中抽运光通过可控光学延迟线, 以控制抽运与探测光脉冲之间的时间延迟. 抽运和探测光被聚焦到样品上同一点, 抽运光斑直径约为探测光斑的两倍. 抽运光正入射, 而探测光小角度入射. 从样品上反射的探测光极 Kerr 转角由光电对管组成的光学平衡桥测量^[8], 差分输出信号由锁相放大器检测. 在 FePt 实验中, 在抽运光路中插入一个 1/4 波片, 用来控制抽运光为左或右旋圆偏振光; 同时光学斩波器以约 420 Hz 频率调制探测光, 并同步锁相放大器. 在 GdFeCo 实验中, 用光弹调制器代替 1/4 波片, 使抽运光为左、右旋圆偏振周期调制的, 并用此周期调制频率同步锁相放大器^[10].

实验样品为 GdFeCo 和 FePt 薄膜, 由磁控溅射方法生长在玻璃衬底上. 前者的易磁化轴垂直于样品表面, 其多层结构为: Glass/Al (10 nm)/SiN (5 nm)/GdFeCo (30 nm)/SiN (20 nm), 其中 Al 作为热扩散传导层, SiN 作为保护层. 后者的易磁化轴在面内, 为单层结构. 这两种记录介质都具有大的磁晶各向异性, 在超高密度光-磁混合记录中具有重要的应用价值^[11,12].

3. 实验结果

3.1. FePt 实验

图 1 所示为零偏置外磁场下, 左、右旋圆偏振和线偏振抽运光激发下的时间分辨极 Kerr 信号. 这些信号具有两个明显的特征: 第一, 在线偏振光激发下, 没有任何可探测的极 Kerr 信号 (空心圆线), 表明没有光感应的 M_z 分量变化; 而在圆偏振光激发下, 在时间延迟零点处观察到一个瞬态磁光 Kerr 峰, 但此峰之后的磁光信号和线偏振光激发的情况

相同; 瞬态 Kerr 峰的大小相同、符号相反, 依赖于抽运光的圆偏振旋向, 表明此 Kerr 峰起源于光子角动量, 而不是与能量交换相关的效应; 第二, 瞬态 Kerr 峰的半高全宽约为 180 fs, 和实验光脉冲的自相关曲线的半高全宽相近.

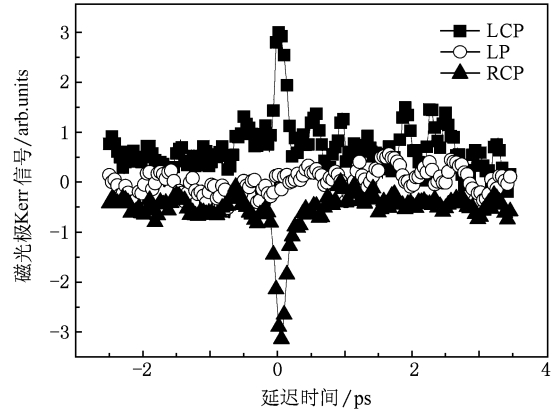


图 1 无外加磁场时抽运光偏振态对 FePt 薄膜的时间分辨极 Kerr 信号的影响. 其中 LCP, RCP 和 LP 分别表示抽运光为左、右旋圆偏振光和线偏振光; 为了让曲线分开, LCP, RCP 的信号分别加了偏置 ± 0.5

为了进一步验证瞬态 Kerr 峰仅依赖于抽运光的圆偏振旋向, 而与样品的铁磁性无关, 给样品施加 320 Oe ($1 \text{ Oe} = 10^3/4\pi \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$) 的外加垂直磁场, 导致样品出现离面初始磁化分量 M_z . 在激光脉冲抽运下, M_z 的瞬态热效应会显示出来. 如图 2 (a) 所示, 依赖于抽运光圆偏振旋向的两个瞬态 Kerr 峰仍然存在. 此后, 左、右旋圆偏振光和线偏振光感应相同的超快磁化演化过程, 如图 2 (a) 所示, 在瞬态 Kerr 峰后 3 条曲线重合, 显示出 M_z 的相同演化过程, 表明与光子角动量无关, 主要受 M_z 的热弛豫控制. 这与文献 [5] 和 [6] 所报道的结果一致.

为了弄清瞬态 Kerr 峰与 M_z 的瞬态热弛豫 Kerr 信号之间的关系, 将左、右旋圆偏振光激发的瞬态 Kerr 信号 (图 2 (a) 实心方块和实心圆线) 求平均, 结果如图 2 (b) 中实心方块线所示, 与线偏振抽运光感应的 M_z 的瞬态热弛豫 Kerr 信号 (空心三角线) 几乎完全重合. 表明瞬态 Kerr 峰与 M_z 的超快热弛豫 Kerr 信号是线性叠加的, 两者是由不同的独立效应引起的.

3.2. GdFeCo 实验

基于圆偏振光的 IFE 和合适的激发流密度, 已

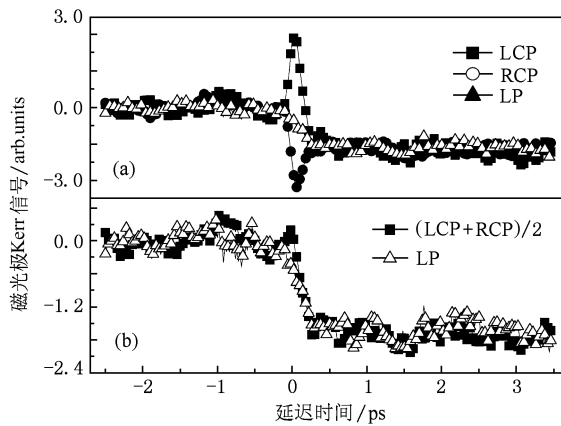


图2 有外加垂直磁场时抽运光偏振态对 FePt 薄膜的时间分辨极 Kerr 信号的影响 外加磁场为 320 Oe;其中 LCP,RCP 和 LP 分别表示抽运光为左、右旋圆偏振光和线偏振光;(LCP + RCP)/2 指 LCP 和 RCP 抽运信号的平均

经在垂直磁化 GdFeCo 薄膜中观察到全光磁化反转^[2-4],表明光子角动量的确与铁磁体系实现了角动量交换.那么,在这样的体系中是否还存在圆偏振光感应的瞬态 Kerr 峰呢?要观察这种效应,必须消除 M_z 分量在激光感应下的温度变化效应.因此,用光弹调制器代替抽运光路中的 1/4 波片,并设置光弹调制器的光程差为 1/4 波长,结果抽运激光在左、右旋圆偏振光之间周期调制,并用此调制频率同步锁相放大器.这样,左、右旋圆偏振抽运光感应的相同的 M_z 的温度变化被自动减去,只剩下依赖于圆偏振光旋向的效应感应的 Kerr 信号^[10].图 3 所示为在饱和外磁场下,不同的抽运激发流密度下的

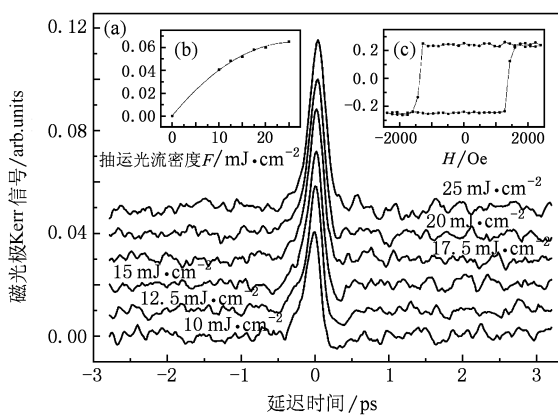


图3 GdFeCo 薄膜的瞬态 Kerr 峰的抽运光流密度依赖性 左上插图为瞬态 Kerr 峰强度随抽运光流密度变化;右上插图为极 Kerr 磁滞回线

瞬态 Kerr 信号.这些信号明显地具有两个特征:第一,瞬态 Kerr 峰强度随激发流密度的增加而增强,如图 3(b)所示;而瞬态 Kerr 峰的宽度约为 250 fs,与激光脉冲的自相关曲线宽度相当,并且不随抽运光流密度变化;第二,如图 3(a)所示,在瞬态 Kerr 峰之后,Kerr 信号为零,表明左、右旋圆偏振光感应的 M_z 的温度变化相同,这和 FePt 薄膜的实验结果是一致的.

4. 瞬态 Kerr 峰的起源及估算分析

上述实验结果表明,无论是在面内磁化或是垂直磁化铁磁体系中,甚至在非铁磁性金属 Au, Ag, Cu^[8]和 Al^[9]薄膜中均在延迟零点处出现与抽运激光脉冲的圆偏振旋向有关的瞬态磁光 Kerr 响应峰,表明此瞬态 Kerr 峰既不与铁磁体系的磁化取向有关,也不限于铁磁体系.因而,它应该起源于与铁磁性无关的效应.而铁磁和非铁磁体系的共性是存在自由电子,因此,我们认为瞬态 Kerr 峰可能起源于自由电子的顺磁磁化,而导致顺磁磁化的磁场正是圆偏振抽运激光脉冲的 IFE 产生的磁场,即起源于 IFE.图 3(b)显示瞬态 Kerr 峰幅度随抽运激光流密度增加而趋于饱和的趋势也支持我们的观点,因为 Faraday 系数 V (Verdet 常数)反比于温度^[1].抽运激光流密度增加,IFE 产生的磁场强度 H 增加,但同时必然导致样品温度增加,进而 Verdet 常数减小,结果乘积 VH 可能趋于饱和.而基于宏观磁致三阶非线性效应的解释^[5],是不能解释这种饱和效应的.此外,文献[13]报道的实验结果也支持我们的观点.在该文献中 IFE 同时感应了延迟零点处的瞬态 Faraday 峰和峰之后的磁化进动振荡.该文献对峰后的磁化振荡给出了详细解释,而对瞬态峰没有解释.事实上,此非常强的瞬态峰可能正是来自 IFE 产生的磁场对样品中的顺磁 Dy 离子的超快顺磁磁化响应.基于我们关于瞬态 Kerr 峰起源的观点及其宽度与激光脉冲自相关曲线的宽度相当的事实,我们推断飞秒激光脉冲的 IFE 产生的磁场脉冲的宽度应该与激光脉冲宽度一致.因而,我们的观点不支持飞秒激光的 IFE 产生的磁脉冲宽度应该由飞秒激光与 Fe 薄膜作用产生的太赫兹电磁辐射的光谱来估算,可能达几个皮秒的观点^[4].

为了进一步支持瞬态 Kerr 峰起源于自由电子

的顺磁磁化的观点,我们以 GdFeCo 薄膜为例,做一个数值计算,以提供进一步的证据.

根据振动样品磁场计测量,一块 $6\text{ mm} \times 6\text{ mm} \times 30\text{ nm}$ 的 GdFeCo 薄膜的饱和磁矩约为 $40\text{ }\mu\text{emu}$, 可以计算出样品的饱和磁化强度为 37.0 emu/cm^3 , 即 37.0 Gs . 由图 3(c) 中的极克尔磁滞回线可知,样品的饱和磁化强度对应的极 Kerr 转角为 0.247° . 根据图 3(b), 当抽运光流密度为 25 mJ/cm^2 时,瞬态 Kerr 峰所对应的极 Kerr 转角为 0.0653° , 可以计算出在该抽运光流密度下,圆偏振光感应的瞬态 Kerr 峰对应的磁化强度为:

$$M = \frac{37.0}{0.247} \times 0.0653/2 = 4.9\text{ Gs}$$

Pauli^[14] 和 Landau^[15] 利用量子力学理论,分别建立了自由电子的顺磁性和抗磁性理论,并且分别导出自由电子的顺磁磁化率和抗磁磁化率,表明自由电子的顺磁磁化率是抗磁磁化率的 3 倍,总体表现出顺磁性. Pauli 导出的自由电子的顺磁磁化率为:

$$\chi = \frac{12m_e\mu_B^2}{h^2}n^{1/3}\left(\frac{\pi}{3}\right)^{2/3}, \quad (1)$$

该公式采用的是 CGS 单位制,其中 m_e 是电子质量, μ_B 为 Bohr 磁子, h 为 Planck 常数, n 是自由电子的密度. 在 GdFeCo 薄膜中,过渡金属 Fe 的比重约为 76%, 而 Gd 的比重约 24%. Fe 的自由电子浓度 $n = 1.699 \times 10^{23}/\text{cm}^3$, 而 Gd 的自由电子密度约为 Fe 的 1.5 倍. 所以, GdFeCo 薄膜中自由电子的密度约为 $n = 1.699 \times 10^{23} \times (0.76 + 0.24 \times 1.5) = 1.9 \times 10^{23}$

cm^{-3} . 代入(1)式,估算出样品的自由电子的顺磁磁化率为 $\chi = 1.3 \times 10^{-6}$.

实验测到的磁化强度 M 对应顺磁和抗磁磁化的总和,所以, $M = 2\chi H/3$. 另外,由磁感应强度定义, $B = H + 4\pi M$. 所以,可导出如下公式:

$$B = \left(\frac{3}{2\chi} + 4\pi\right)M. \quad (2)$$

将前面计算的 25 mJ/cm^2 抽运光流密度感应的顺磁磁化强度 $M = 4.9\text{ Gs}$ 代入(2)式,可获得 GdFeCo 薄膜内的磁感应强度为 570 T . 类似地可以计算出所有实验抽运激发流密度下的 M 和 B 值,分别如表 1 中第二和第三行所示. 此磁感应强度 B 应该来自于 IFE. 那么,IFE 能否产生如此强的 B 呢? 下面做一个估算.

目前已有文献分别报道 GdFeCo 薄膜的 IFE 灵敏度为 $2\text{ T/mJ}\cdot\text{cm}^{2[2]}$ 和 $80\text{ T/mJ}\cdot\text{cm}^{2[4]}$. 为什么会有如此大的 IFE 灵敏度差异? 我们与文献[2]和[4]的作者进行了交流,作者认为 IFE 灵敏度对 GdFeCo 薄膜的成分很敏感,是由于成分差别导致的. 基于这样的 IFE 灵敏度,估算与我们实验抽运光流密度对应的 IFE 产生的 B 值如表 1 中第四行所示. 斜线上下的值分别对应 $2\text{ T/mJ}\cdot\text{cm}^2$ 和 $80\text{ T/mJ}\cdot\text{cm}^2$ 的 IFE 灵敏度. 比较表 1 中第三和四行的 B 值,发现基于我们实验结果和顺磁磁化模型估算的 B 值在基于 IFE 产生的 B 值范围内. 这支持我们的观点:瞬态 Kerr 峰可能起源于自由电子的顺磁磁化,而导致顺磁磁化的磁场正是圆偏振抽运激光脉冲的 IFE 产生的磁场.

表 1 不同抽运光流密度下瞬态 Kerr 峰对应的 M, B 及根据 IFE 计算的 B 对比

抽运光流密度 $F/\text{mJ}\cdot\text{cm}^2$	10.0	12.5	15.0	17.5	20.0	25.0
瞬态 Kerr 峰对应的磁化强度 M/Gs	3.0	3.6	3.9	4.4	4.5	4.9
对应 M 的磁感应强度 B/T	350	420	450	510	520	570
IFE 产生的磁感应强度 B/T	20/800	25/1000	30/1200	35/1400	40/1600	50/2000

5. 结 论

使用飞秒时间分辨抽运-探测磁光 Kerr 光谱技术,实验研究了圆偏振光抽运面内磁化 FePt 和垂直磁化 GdFeCo 薄膜的磁化演化动力学,发现在时间延迟零点处均出现瞬态 Kerr 峰,峰的宽度与激光脉冲的自相关曲线宽度一致. 另外,文献报道在非铁磁性

金属中也观察到此瞬态 Kerr 峰. 因而,此瞬态 Kerr 峰不仅与磁化取向无关,而且与铁磁性无关. 我们提出此瞬态 Kerr 峰可能起源于自由电子的顺磁磁化,而顺磁磁化的外磁场来自圆偏振抽运光的 IFE 的观点. 基于顺磁磁化模型计算的磁感应强度位于 IFE 产生的磁感应强度范围内,支持此观点. 基于我们的观点也能解释瞬态 Kerr 峰随抽运光流密度增加而趋于饱和的现象. 最后,基于我们的顺磁磁化观点,飞秒激光

的逆 Faraday 效应感应的磁场脉冲宽度应该与激光脉冲宽度一致,不支持文献[4]中提出的应该由飞秒激光与 Fe 薄膜作用产生的太赫兹电磁辐射的光谱来估

算可能达几个皮秒的观点.

感谢复旦大学周仕明教授和徐振博士制作实验样品.

-
- [1] Van der Ziel J P, Pershan P S, Malmstrom L D 1965 *Phys. Rev. Lett.* **15** 190
- [2] Stanciu C D, Hansteen F, Kimel A V, Kirilyuk A, Tsukamoto A, Itoh A, Rasing Th 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 047601
- [3] Hohlfeld J, Stanciu C D, Rebei A 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 152504
- [4] Vahaplar K, Kalashnikova A M, Kimel A V, Hinzke D, Nowak U, Chantrell R, Tsukamoto A, Itoh A, Kirilyuk A, Rasing Th 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 117201
- [5] Wilks R, Hicken R J, Ali M, Hickey B J, Buchanan J D R, Pym A T G, Tanner B K 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 7441
- [6] Dalla Longa F, Kohlhepp J T, de Jonge W J M, Koopmans B 2007 *Phys. Rev. B* **75** 224431
- [7] Zhang G P, George T F 2008 *Phys. Rev. B* **78** 052407
- [8] Kruglyak V V, Hicken R J, Ali M, Hickey B J, Pym A T G, Tanner B K 2005 *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **7** S235
- [9] Wilks R, Hicken R J 2004 *J. Phys: Condens. Matter* **16** 4607
- [10] Koopmans B, Haverkort J E M, de Jonge W J M, Karczewski G 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 6763
- [11] Wang S H, Zha C L, Gao J, Ma B, Zhang Z Z, Jin Q Y 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1719 (in Chinese) [王淑华、查超麟、高静、马 斌、张宗芝、金庆原 2007 物理学报 **56** 1719]
- [12] Gao R X, Xu Z, Chen D X, Xu C D, Chen Z F, Liu X D, Zhou S M, Lai T S 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 580 (in Chinese) [高瑞鑫、徐 振、陈达鑫、徐初东、陈志峰、刘晓东、周仕明、赖天树 2009 物理学报 **58** 580]
- [13] Kimel A V, Kirilyuk A, Usachev P A, Pisarev R V, Balbashov A M, Rasing T 2005 *Nature* **435** 655
- [14] Pauli W 1927 *Z. f. Physik* **41** 81
- [15] Landau L 1930 *Z. f. Physik* **64** 629

Physical origin of transient Kerr peak induced by circularly polarized laser in ferromagnetic films *

Chen Da-Xin Chen Zhi-Feng Xu Chu-Dong Lai Tian-Shu[†]

(*State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, School of Physics and Engineering, Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China*)

(Received 20 January 2010; revised manuscript received 4 February 2010)

Abstract

The magnetization dynamics of in-plane anisotropic FePt and perpendicularly anisotropic GdFeCo films induced by circularly polarized laser excitation is investigated using femtosecond time-resolved pump-probe Kerr spectroscopy. It is found that a transient Kerr peak occurs near zero-time delay, respectively for each sample. The origin of the peaks is analyzed. It is pointed out that the transient Kerr peaks are not related to ferromagnetism and may originate from paramagnetic magnetization of free electrons in the samples, while the magnetic field that magnetizes the free electrons comes from inverse Faraday effect of the circularly polarized pump laser. The calculation results based on the paramagnetic magnetization model support such a viewpoint. Based on our points, the duration of magnetic pulses induced by inverse Faraday effect should be the same as that of the pump laser pulses.

Keywords: circularly polarized laser, inverse Faraday effect, free electrons, paramagnetism

PACC: 7847, 7215H, 7550S, 7560

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60490295, 60678009, 10874247), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20090171110005) and the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 9151027501000077).

[†] Corresponding author. E-mail: stslts@mail.sysu.edu.cn