

## 特邀综述

## 超快自旋动力学: 从飞秒磁学到阿秒磁学

杨旭<sup>1)2)</sup> 冯红梅<sup>1)</sup> 刘佳南<sup>2)3)</sup> 张向群<sup>2)</sup> 何为<sup>2)</sup> 成昭华<sup>1)2)3)†</sup>

1) (松山湖材料实验室, 阿秒科学中心, 东莞 523808)

2) (中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

3) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

(2024年5月8日收到; 2024年6月13日收到修改稿)

超快自旋动力学是研究材料受到外场激发后, 在皮秒至阿秒时间尺度下其自旋的运动行为. 随着激光技术的不断提升, 1996年开始的飞秒磁学成为磁学中的重要研究领域, 是实现更快响应的新型自旋电子学器件的重要技术途径. 尽管已有几十年的历史, 飞秒磁学依旧存在着非常多的物理问题尚未解决, 而理解这些问题需要研究更快时间尺度下的自旋动力学过程. 利用阿秒激光脉冲与磁性材料的相互作用, 可研究亚飞秒乃至阿秒时间尺度下、元素分辨的自旋动力学行为, 即阿秒磁学. 本文介绍了超快自旋动力学近年来的一些重要研究进展以及存在的问题, 阿秒磁学研究的机遇与挑战, 并对超快自旋动力学的未来发展趋势及前景进行分析与展望.

**关键词:** 超快自旋动力学, 飞秒磁学, 阿秒脉冲, 阿秒磁学**PACS:** 75.40.Gb, 75.70.Tj, 75.78.-n, 75.78.Jp**DOI:** 10.7498/aps.73.20240646

## 1 引言

自旋动力学研究的是磁性材料的磁矩(自旋)在外场(磁场、光场、电场、微波场等)激发后随时间的动态演化过程. 自旋动力学领域的发展离不开泵浦-探测技术的不断提升<sup>[1,2]</sup>. 从1940年开始, 晶体管的出现开启了微波电子学, 其所能研究的时间尺度在10 ps—1 ns量级. 在磁性材料中, 利用微波激励铁磁材料产生吉赫兹的铁磁共振现象<sup>[3,4]</sup>. 在1960年后, 激光的诞生使得超快光学领域得以发展. 伴随着激光脉冲宽度不断降低, 20世纪末产生了飞秒磁学这一交叉学科(超快/脉冲激光与磁学的结合)<sup>[2]</sup>. Beaurepaire等<sup>[5]</sup>利用60 fs脉冲宽度的飞秒激光激发镍薄膜, 首次发现了飞秒脉冲激光诱导的超快退磁现象, 并提出唯象的三温度模型, 将晶格、电子以及自旋分解为3个热力学库,

将飞秒激光作为热源. 在不同的时间尺度下, 热量在3个热力学库之间的相互转移, 使得自旋在不同时间尺度下产生不同的状态<sup>[5]</sup>. 时至今日, 超快磁翻转、飞秒尺度下磁电性能的调控等工作相继被报道<sup>[6-9]</sup>. 随着超快激光技术的不断优化, 激光脉冲宽度进一步的减小, 研究者们于1987年首次发现高次谐波辐射<sup>[10,11]</sup>, 阿秒脉冲进入科学家的视野, 这为凝聚态物理的发展带来很多实验基础<sup>[12]</sup>. 阿秒激光具有高光子能量和超短脉宽的特点, 使研究亚飞秒时间下超快自旋动力学成为可能. 将阿秒脉冲与磁学结合, 可研究在阿秒时间尺度下的自旋动力学, 产生一门全新的学科, 即阿秒磁学<sup>[13]</sup>.

量子力学的不确定性原理指出, 各种相互作用对应着不同的时间尺度, 在磁性材料中尤为如此. 调控磁矩最简单的方式就是外加磁场, 对于大小在1—10 T的外磁场, 其塞曼能为0.1—1 meV, 对应的的时间尺度在百皮秒至纳秒量级. 在此时间尺度

† 通信作者. E-mail: zhcheng@iphy.ac.cn

下, 磁共振与微波磁学逐步开展, 多为研究铁磁金属与重金属异质结中的自旋泵浦效应<sup>[14,15]</sup>, 磁性多层膜中的自旋转移力矩以及自旋-轨道力矩等<sup>[16,17]</sup>, 为自旋电子学器件的发展做出了非常多的贡献. 时至今日, 此时间尺度下的动力学理论已经日趋完善. 磁性材料的磁矩不仅可以被外磁场调控, 其自身的自旋-轨道耦合效应也是影响其物理性质的重要因素<sup>[18]</sup>, 例如它影响材料的拓扑性质<sup>[19,20]</sup>、产生新奇的能带结构<sup>[21,22]</sup>、产生(逆)自旋霍尔效应<sup>[23,24]</sup>以及诱导出斯格明子<sup>[25,26]</sup>等. 自旋-轨道耦合等效磁场在 10—100 T 量级, 对应的时间尺度在 10—100 ps 量级. 在此时间尺度下, 可以利用飞秒脉冲激光, 诱导磁性材料发生超快退磁现象<sup>[5]</sup>以及太赫兹 (THz) 波的产生<sup>[27]</sup>, 可被用于研究材料的高频属性. 该方法逐步形成了飞秒磁学及 THz 自旋电子学研究领域. 该领域的研究已经开展三十余年, 至今仍然存在诸多问题, 例如角动量在飞秒时间尺度下如何转移, 超快退磁的机制不清晰等. 物质的磁性起源于电子自旋的直接交换相互作用, 其等效场大小为 100—1000 T, 交换作用的有效距离在  $10^{-10}$ — $10^{-9}$  m 范围, 对应的时间尺度在 10 fs—100 as 量级. 阿秒脉冲技术的发展使得探究磁有序的起源、亚飞秒至阿秒时间尺度下探索角动量的相互转移成为可能. 这一新兴的领域为超快磁动力学的发展带来新的机遇与挑战.

前面讲述了磁动力学研究的时间尺度及其对应的相互作用, 本文主要总结和概括了飞秒时间尺度下的超快自旋动力学到目前的主要进展以及存在的问题, 阿秒磁学研究的机遇与挑战, 以及超快磁学的发展方向. 希望能够起到抛砖引玉的作用, 为读者进一步了解和研究超快自旋动力学提供一定的帮助.

## 2 超快自旋动力学主要进展及存在的问题

相比于半导体电子学器件, 自旋电子学器件依靠电子自旋属性为载体, 具有高灵敏度、超快响应、非易失性、低功耗和高存储密度等优点, 受到广泛的关注<sup>[28]</sup>. 1988 年, Albert Fert 和 Peter Grünberg 在磁性多层膜中发现了巨磁电阻效应, 为信息存储技术带来了福音<sup>[29,30]</sup>. 随着电子器件尺寸逼近物理极限, 器件的量子尺寸效应、高功耗以及发

热等问题限制了以电子电荷属性为载体的半导体器件性能的进一步提升. 激光与磁性材料的相互作用可以实现超快时间尺度下的信息读写功能, 因此为了实现以自旋为载体的存储单元“更小”、响应速度“更快”的特点, 研究超快时间尺度下材料的自旋动力学显得尤为重要<sup>[31]</sup>. 从 1996 年发展至今, 大量的理论和实验的工作尝试去理解超快自旋动力学, 直到今天, 超快自旋动力学依然存在很多的问题.

### 2.1 超快自旋动力学的主要进展

超快自旋动力学主要依赖于激光与磁性材料相互作用产生的两种效应, 即磁光克尔效应/法拉第效应与磁圆二色效应, 结合泵浦-探测技术, 实现观测自旋随时间变化的目的. 在自旋动力学过程中, 飞秒至皮秒时间尺度下的超快退磁、全光磁反转、超快自旋流与太赫兹波的激发等内容吸引着国内外科人员的关注, 该时间尺度下的研究既可以理解其中的物理机制同时也为超快自旋电子学器件的开发奠定基础. 下面主要对这三方面的内容进行介绍.

#### 2.1.1 超快退磁机理及调控

磁性材料被飞秒激光脉冲泵浦后, 大多数磁性材料的磁化强度迅速降低, 甚至可能降为零, 即从铁磁态转变到顺磁态, 材料的各向异性场也随之改变, 常见磁性金属中该过程在几百飞秒内完成, 称为超快退磁现象; 随后各向异性场逐渐恢复, 磁化强度逐渐恢复, 大约在几十皮秒; 最后, 当各向异性场恢复后, 磁矩围绕有效场进动, 最终回到平衡位置, 大约在百皮秒至纳秒量级 (图 1(b))<sup>[32]</sup>. 因此, 超快自旋动力学的目标是理解晶格、电子、自旋和脉冲激光之间相互作用有关的物理过程和时间常数 (图 1(c)).

实验上, 从 1996 年 Beaurepaire 等<sup>[5]</sup>在 Ni 薄膜中发现超快退磁行为以来, 在过去的几十年, 除了 Fe, Co, Ni 这些 3d 过渡族的磁性金属外, 在非常多的铁磁合金或异质结体系, 包括 NiFe 合金<sup>[33,34]</sup>、CoPt<sub>3</sub><sup>[35]</sup>、GdFeCo<sup>[36]</sup>、Fe/Gd<sup>[37]</sup>、Fe/Pd<sup>[38]</sup>等, 磁性氧化物 CrO<sub>2</sub><sup>[39]</sup>、La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub><sup>[40]</sup>、外尔半金属 Co<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>S<sub>2</sub><sup>[41]</sup>、二维磁性材料 Fe<sub>3</sub>GeTe<sub>2</sub><sup>[42,43]</sup>、CrGeTe<sub>3</sub><sup>[44,45]</sup>、CrI<sub>3</sub><sup>[46]</sup>、MnBi<sub>2</sub>Te<sub>4</sub><sup>[47-49]</sup>等材料体系中均观察到了亚皮秒时间尺度下的超快自旋动力学过程. 在不同的材料中, 超快退磁的物理内涵各不相同, 科学家

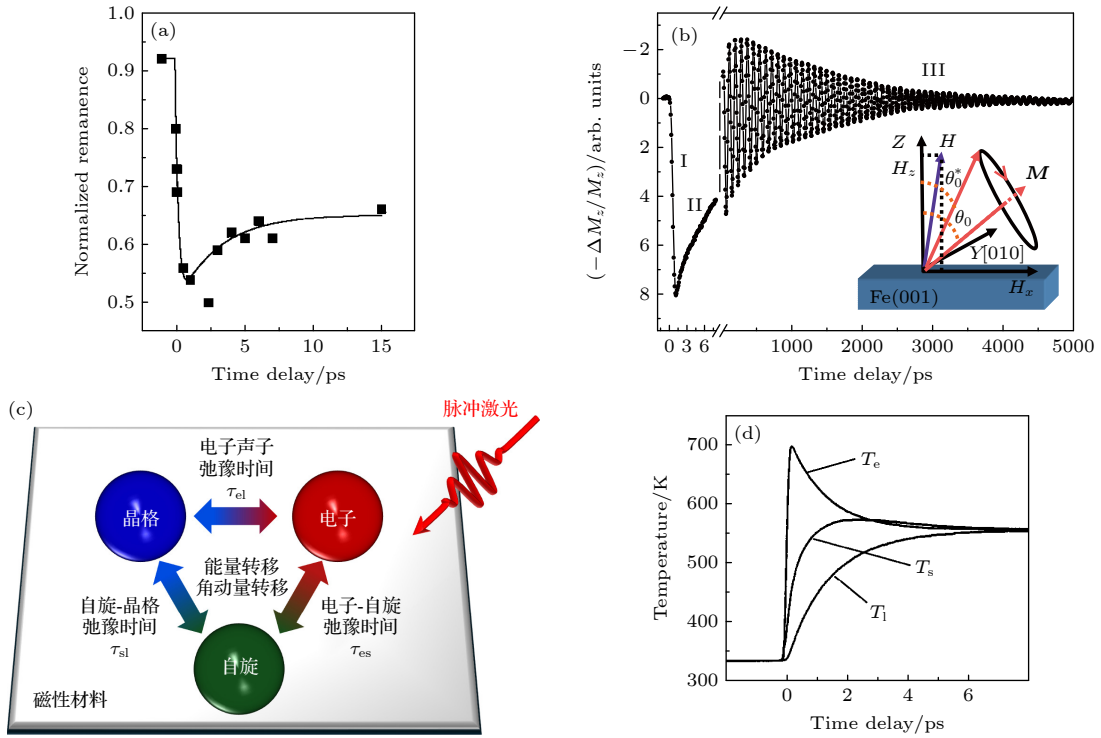


图 1 超快自旋动力学不同时间区域 (a) Ni 薄膜的超快退磁现象<sup>[5]</sup>; (b) 超快自旋动力学 3 个过程, I 为超快退磁, II 为磁矩恢复, III 为磁矩进动<sup>[32]</sup>; (c) 激光与铁磁性金属相互作用的热力学库; (d) Ni 的三温度模型得到的电子、晶格、自旋的温度变化<sup>[5]</sup>  
 Fig. 1. Different time regimes of the ultrafast spin dynamics: (a) The ultrafast demagnetization of Ni thin film<sup>[5]</sup>; (b) the three-time regimes of Fe/MgO, I represents ultrafast demagnetization, II represents magnetic moment recovery, and III represents magnetic moment precession<sup>[32]</sup>; (c) the interaction between the laser pulse and the three thermalized reservoirs of electrons, lattice, and spin; (d) the temperature changes of electrons, lattice, and spin with time<sup>[5]</sup>.

们努力去理解超快退磁行为的产生机制, 并致力于探索超快退磁的调控手段.

理论上, Beaurepaire 等<sup>[5]</sup> 提出唯象的“三温度模型”(3 TM), 即将材料的晶格、电子与自旋考虑为 3 个热力学库, 激光是热源, 在不同时刻热量在 3 个热力学库之间转移 (图 1(c)). 三温度模型将动力学过程转化为一种热效应的弛豫, 它成功解释了磁性 Ni 金属薄膜的超快退磁行为 (图 1(d)). 直到现在, 3TM 也起着很重要的作用, 但它的缺点在于, 它只考虑了 3 个热力学库之间的能量转移过程, 忽略了角动量的转移, 此外, 超快自旋动力学是高度非平衡态过程, 对温度的定义已经失去了其物理意义.

以 Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG) 方程为基础的原子尺度模拟与以 Landau-Lifshitz-Bloch (LLB) 方程为基础的微磁学模拟均尝试理解超快退磁行为<sup>[50,51]</sup>. 后来 Koopmans 等<sup>[52]</sup> 又提出微观三温度模型 (M3TM), 将角动量的耗散过程考虑进来, 从电子散射的角度理解超快退磁的物理机制, 认为 Elliott-Yafet 散射机制对超快退磁过程起主导作

用, 即声子辅助的自旋翻转过程. 该模型也成功解释了 Gd 等磁性材料体系会产生两步退磁 (Type II) 行为的原因<sup>[53]</sup>. 除磁性单层膜外, 科学家们认为, 在磁性异质结体系中, 非局域的自旋超扩散模型是诱导发生超快退磁的机制<sup>[54]</sup>. 在该体系中, 飞秒时间尺度下, 由于磁矩的瞬间减小, 会产生自旋流, 被称为超快自旋流, 且该自旋流会泵浦到临近的非磁性层中<sup>[55]</sup>. 因此, 通过形成异质结的手段, 超快退磁过程会被加速. 2008 年, Malinowski 等<sup>[55]</sup> 在  $[\text{Co}/\text{Pt}]_n$  多层膜体系率先提出超快自旋流的存在, 以及其对超快退磁的影响. 他们认为, 在一定条件下超快自旋流会增加退磁大小, 并加速超快退磁过程; 此外, Schellekens 等<sup>[56]</sup> 在磁性金属多层膜异质结中观察到了超快自旋流诱导磁矩发生进动. 最近, 本课题组<sup>[57]</sup> 在铁磁/拓扑绝缘体异质结体系  $\text{Fe}/\text{Bi}_2\text{Se}_3$  发现了拓扑表面态可以进一步加速超快退磁 (图 2). 利用泵浦-探测的磁光克尔技术 (TR-MOKE), 在存在拓扑表面态的  $\text{Fe}/\text{Bi}_2\text{Se}_3$  (9 QL) 异质结 (图 2(a)) 中发现飞秒激光诱导的超快退磁现象, 并产生超快自旋流, 对比拓扑表面态



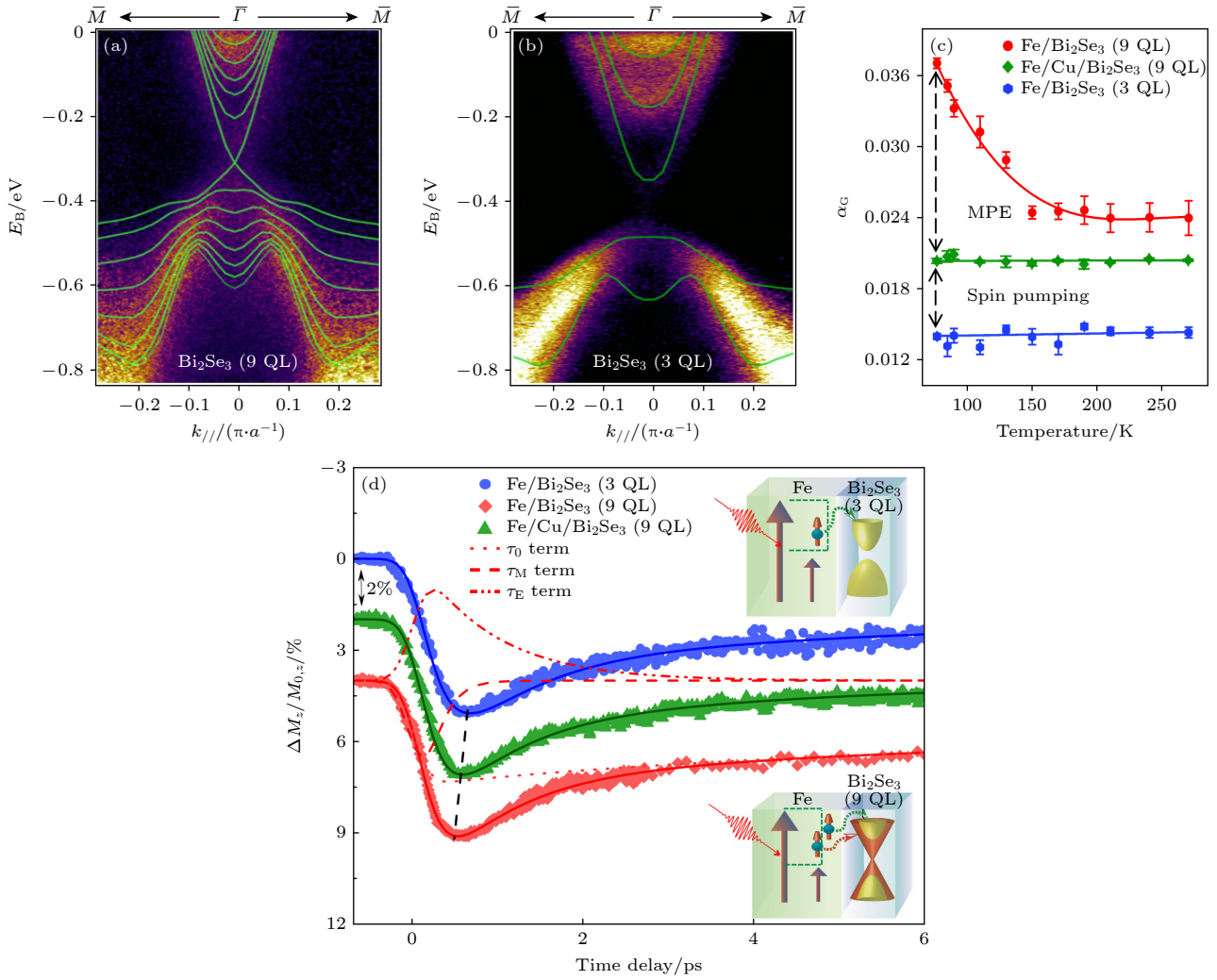


图 2 拓扑表面态增强的 Fe/Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 的超快自旋动力学行为 (a), (b) 分别为 9 QL 和 3 QL 的 Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 能带结构; (c) 异质结阻尼因子随温度的变化; (d) Fe/Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> (9 QL 和 3 QL) 表面态对超快退磁的影响<sup>[57]</sup>

Fig. 2. Topological surface state enhanced ultrafast spin dynamics of Fe/Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> heterostructures: (a), (b) The band structures of Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> with the thickness of 9 QL and 3 QL; (c) temperature dependence of damping; (d) ultrafast demagnetization curves of different samples<sup>[57]</sup>.

消失的 Fe/Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>(3 QL) 的异质结 (图 2(b)), 拓扑表面态明显加速超快退磁时间, 同时导致阻尼因子的增强 (图 2(c)). 结合第一性原理计算, 被加速的超快退磁过程与增强的阻尼因子与 Fe 与 Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 的表面态的杂化直接相关<sup>[58]</sup>.

在一些复杂自旋结构的材料中, 超快退磁行为并不是一步退磁 (亚皮秒) 就完成的, 而是会出现两步退磁的现象<sup>[53]</sup>. 最近, 在可产生斯格明子 (Skyrmion) 的 FeGe 材料体系中, 发现改变环境温度、外磁场以及激光功率, FeGe 的超快退磁行为可以发生从一步退磁 (Type I) 到两步退磁 (Type II) 的转变 (图 3)<sup>[59]</sup>. 与其他材料中发生的两步退磁相比, FeGe 中的两步退磁占据更大的温区. 通过将 FeGe 的退磁相图与磁相图对比, 两步退磁主

要发生于斯格明子存在的温度范围内, 意味着两步退磁行为在斯格明子的光调控中起到主导作用. 为了探究 FeGe 退磁行为发生转变的原因, 课题组利用微观三温度模型 (M3TM) 进行分析, 并结合瞬态反射率测量结果, 确定了 FeGe 中出现两步退磁是由其弱电声耦合导致的, 同时利用原子尺度模拟再现了温度和激光功率依赖的退磁行为转变<sup>[59]</sup>. 对于自旋进动过程, 从定温变场测试中观察到, FeGe 在低场下存在螺旋磁子激发, 高场转变为一致进动行为, 吉尔伯特 (Gilbert) 阻尼在 0.15—0.6 范围内变化; 从定场变温测量可以发现低温存在螺旋磁子激发, 高温情况被抑制甚至消失, 证明在斯格明子可被激光写入或删除的条件下, 螺旋磁子无法被稳定激发. 该结果确认了手性磁体 FeGe 在超

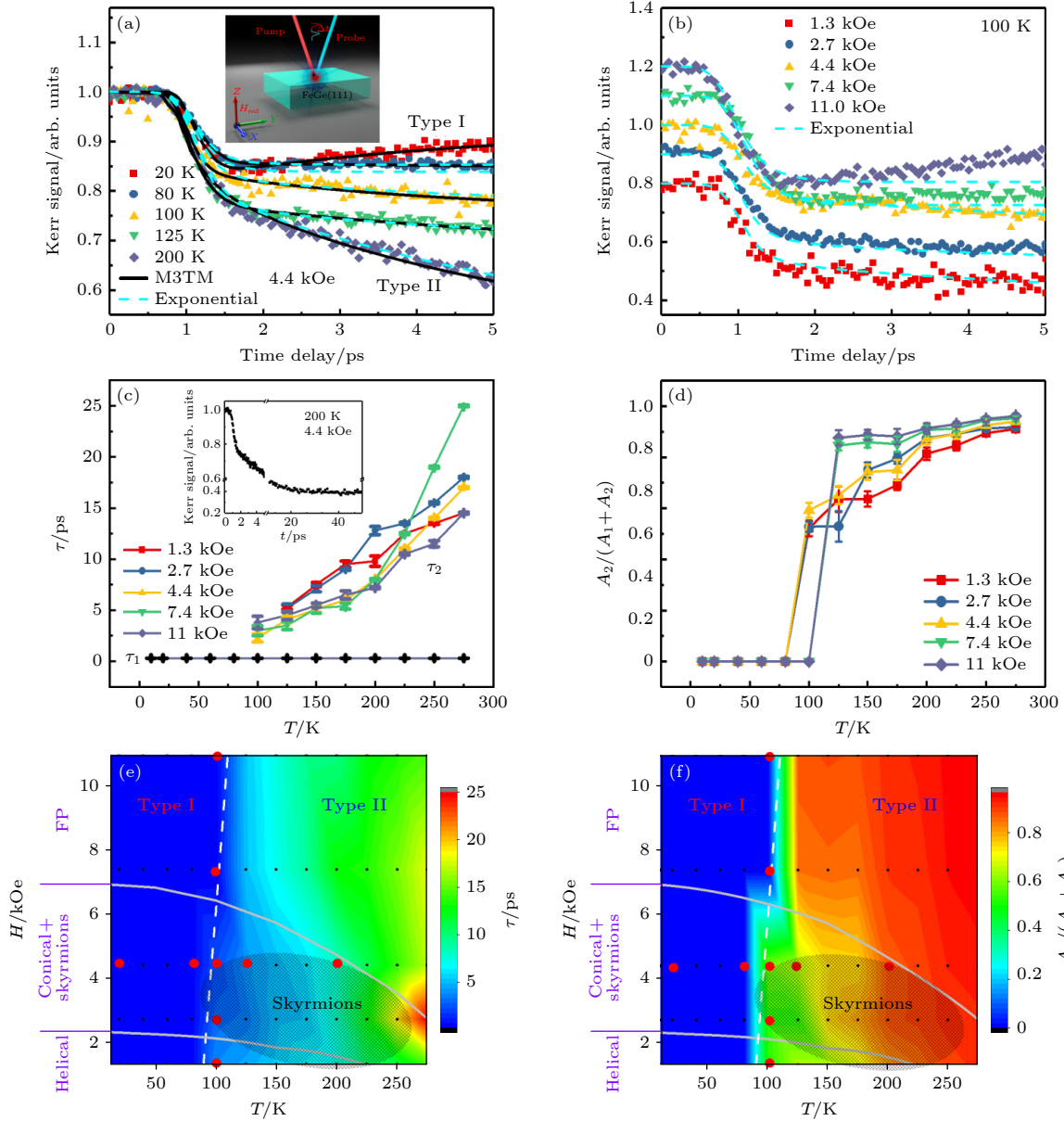


图 3 可产生 Skymions 的 FeGe 材料中 Type I-Type II 超快退磁的转变 (a), (b) 分别为温度、磁场相关的 FeGe 薄膜的超快退磁行为; (c), (d) 分别为第 1 步退磁与第 2 步退磁的退磁时间、退磁量的比值, 其中 (c) 插图为 50 ps 内的示例曲线; (e), (f) 分别为磁性测量的 FeGe 磁相图, 灰色线为磁相转变区, 椭圆形区域为 Skymions 出现区域, 不同的颜色代表 (c) 和 (d) 的数值, 白色虚线为 Type I 到 Type II 转变的边界, 黑色点为测量 TR-MOKE 的条件, 红色点为 (a) 和 (b) 的测量条件<sup>[59]</sup>

Fig. 3. Transition of Type I-Type II ultrafast demagnetization in FeGe materials capable of generating Skymions. (a), (b) The dependence of the ultrafast demagnetization of FeGe film on the ambient temperature scenario and field scenario. (c), (d) The demagnetization times and amplitude ratios between the second and first step obtained by bi-exponential function. Inset in (c) is an example curve shown up to 50 ps. (e), (f) The magnetic phase diagrams of FeGe obtained by magnetization measurements. Gray solid lines are the boundaries of magnetic phases. Elliptic shadow is a reference skymion region. Color map in (e), (f) represents the data in (c), (d), respectively. The white dashed line is the boundary between Type-I and Type-II demagnetization. Black dots are all the TR-MOKE measurement points; red dots are the data points shown in (a), (b)<sup>[59]</sup>.

快时间尺度内的磁性演化过程, 为手性磁体中磁有序的激光调控提供了依据, 也为基于拓扑磁结构的自旋电子学器件的超快应用提供了思路。

### 2.1.2 全光学自旋翻转

超快退磁现象被发现后, 科学家们希望这种在

百飞秒时间尺度下对磁矩的操纵方式得以被利用。2007 年, Stanciu 等<sup>[6]</sup>首次借助圆偏振的飞秒激光在亚铁磁 GdFeCo 中实现超快磁翻转 (图 4)。这也是首次采用飞秒脉冲激光实现的无磁场下的磁翻转, 即全光学磁翻转。实验中, 他们采用波长 800 nm, 40 fs 的圆偏振激光垂直入射于磁性材料表面, 飞秒

激光首先将磁性材料加热到略低于居里点,同时圆偏振光可类比为沿磁化方向上的磁场,因此可实现无磁场下的磁翻转.此外,科学家们还认为,左右圆偏振光的角动量传递给磁性材料的过程也会导致全光磁翻转.

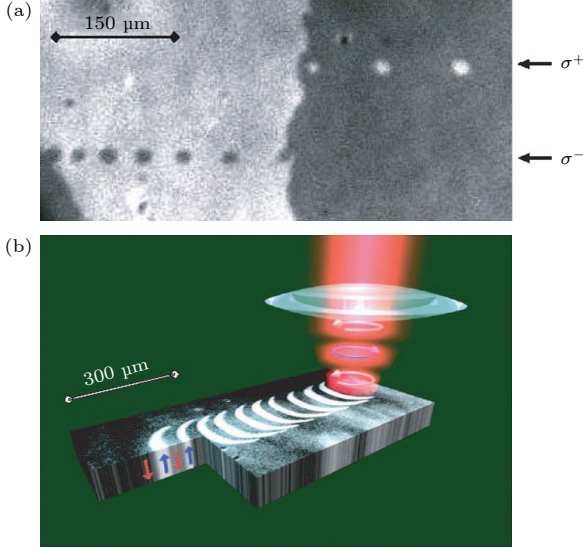


图 4 圆偏振的飞秒激光脉冲全光学磁记录<sup>[6]</sup>

Fig. 4. All-optical magnetic recording by the circular femto-second laser pulse<sup>[6]</sup>.

随后在 2014 年, Hofmann 团队<sup>[7]</sup>利用超快圆偏振的飞秒脉冲激光,分别在铁磁性多层膜  $[\text{Co}(0.4 \text{ nm})/\text{Pt}(0.7)]_N$  体系、高各向异性的 FePt 晶粒中也实现了全光磁翻转,并认为磁性材料的光控制是一种普遍的现象,这一发现对数据存储行业产生重大影响.2023 年, Igarashi 团队<sup>[8]</sup>在  $[\text{Pt}/\text{Co}]/\text{Cu}/[\text{Co}/\text{Pt}]$  这一典型自旋阀结构中,利用飞秒脉冲激光产生瞬态自旋转移力矩 (STT) 效应,成功将超快自旋动力学与自旋电子学领域结合在一起.根据全光磁翻转现象,有希望采用左右圆偏振的飞秒激光操纵磁矩,实现纳米尺度下超快速读写的新途径.

### 2.1.3 超快自旋流与 THz 波激发

对于大部分的铁磁性材料,发生超快退磁时,伴随产生的超快自旋流的弛豫时间在几百个飞秒的量级,对应的频率范围在太赫兹波段.由于 THz 波的能量量级处于多种相互作用的能量范围,并且在生物、医疗、物理和化学等领域有广泛的应用<sup>[60,61]</sup>,因此利用飞秒激光诱导产生 THz 波的材料及器件是当前一大研究热点.

Kampfrath 等<sup>[62]</sup>在 Fe/Au 以及 Fe/Ru 这种

铁磁金属/重金属异质结体系中,发现了利用飞秒激光诱导产生的超快自旋流,随后自旋流泵浦到临近的非磁性层,由于重金属材料具有强的自旋-轨道耦合效应,通过逆自旋霍尔效应<sup>[24,63-65]</sup>,可以将通入其中的自旋流转化为电荷流<sup>[66-68]</sup>,从而产生太赫兹波.2018 年, Zhou 等<sup>[27]</sup>将非磁性层更改为具有 Rashba 效应 Ag/Bi 界面,由于 Rashba 效应是一种自旋-轨道耦合效应,利用二维的逆 Rashba-Edelstein 效应可以产生 0.1—5 THz 的太赫兹波,且可以将此太赫兹波与逆自旋霍尔效应产生的太赫兹波进行叠加,因此在同一个器件中可以增大太赫兹波的产生效率(图 5(a), (b)).

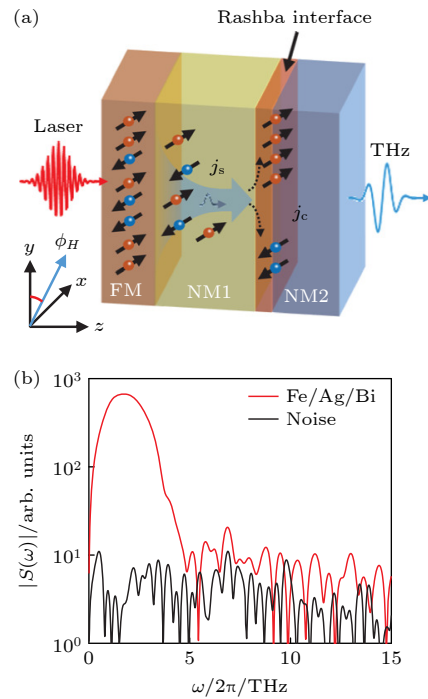


图 5 (a) 超快激光脉冲激发下基于逆 Rashba-Edelstein 效应的太赫兹发射原理图<sup>[27]</sup>; (b) Fe/Ag/Bi 薄膜的频域太赫兹信号<sup>[27]</sup>

Fig. 5. (a) Schematic of THz emission via inverse Rashba-Edelstein effect upon excitation of ultrafast laser pulses<sup>[27]</sup>; (b) the frequency-domain THz signal of Fe/Ag/Bi<sup>[27]</sup>.

在反铁磁体系中,由于存在较强的反铁磁交换相互作用,其很少在超快自旋动力学领域内被研究.在具有非线性光学效应的反铁磁 NiO 与重金属 Pt 异质结中, Wu 团队<sup>[69]</sup>利用飞秒激光在零场下激发出超快自旋流并产生太赫兹波. Tang 等<sup>[70]</sup>在  $\text{Fe}/\text{RFeO}_3$  ( $R = \text{Dy}, \text{Er}$ ) 体系中,利用铁磁材料与反铁磁材料的界面交换耦合,可以在 10—300 K 温度范围内有效诱导出多种进动模式,对应



的频率在 THz 量级. 意味着可以通过增加铁磁层, 利用界面交换耦合, 使用飞秒激光对反铁磁的磁矩进行操纵.

## 2.2 超快自旋动力学存在的问题与争议

虽然超快自旋动力学到目前已取得很多的进展, 但超快自旋动力学过程依然充满非常多的争议与未知, 这也正是超快自旋动力学的魅力之处. 下面将超快自旋动力学存在的问题与争议进行整理与讨论.

### 2.2.1 超快退磁机理存在的问题

在 2.1.1 节中分析了产生超快退磁的几种机理, 这几种机理针对不同的材料体系. 但不同的研究团队之间的实验结果还具有很强的矛盾. 例如, 自旋-轨道耦合强度对超快退磁时间的影响尚不明确: 在掺杂稀土元素的坡莫合金体系中, 稀土元素的自旋-轨道耦合远强于 3d 过渡族金属, 实验结果表明, 随着稀土掺杂量的增大, 超快退磁时间增加<sup>[33,34]</sup>; 而对比单层 Co 薄膜与 Co/Pt 垂直磁各向异性薄膜-的超快退磁时间, Co/Pt 薄膜的超快退磁过程快于单层 Co 薄膜, Kuiper 等<sup>[71]</sup>认为是 Co/Pt 界面自旋-轨道耦合的增强导致超快退磁时间的缩短. 但 Zhang 团队<sup>[72]</sup>认为, 在非平衡态时, 材料中全部原子的自旋-轨道耦合均起作用, 可将超快退磁时间缩短至几十飞秒. 可见, 自旋-轨道耦合强度这一物理量在不同的体系中对超快退磁时间的影响存在多种可能性, 随着研究体系的不断增加, 导致超快退磁的原因会变得更加繁复, 甚至在同一体系中存在多种退磁机制的影响, 因此如何区分不同退磁机制的贡献还需要进一步的探索.

除了退磁机制的争议, 利用时间依赖的密度泛函理论 (time dependent density functional theory,

TDDFT) 计算得到的超快退磁时间, 与实验的超快退磁时间以及最大退磁量均存在差异, 即到目前为止, 没有非常完美描述超快自旋动力学的理论模型与框架.

在超快退磁过程中, 角动量与能量的转移过程是不清楚的, 通常晶格和自旋之间的弛豫时间在百皮秒量级, 但最近有工作报告, 利用超快电子衍射在 Ni 薄膜中发现角动量从自旋转移到晶格仅需要百飞秒量级<sup>[73]</sup>, 这远远小于自旋和晶格能量交换的时间, 并认为这对超快退磁过程有影响.

当超退磁发生时, 每个原子所携带的自旋角动量的状态到目前是不清楚的, 是每一个原子磁矩发生了局域的运动, 还是整体降低导致了宏观磁矩下降, 这些内容的探索需要到更短的时间尺度.

### 2.2.2 超快退磁时间与阻尼因子的关系

2005 年, Koopmans 等<sup>[52]</sup>在理论上给出超快退磁时间与阻尼因子成反比, 但随后国内外的实验与理论预期截然相反<sup>[34,74-76]</sup>. 阻尼因子是纳秒时间尺度下的磁动力学参数, 两个时间尺度对应不同的物理过程, 但二者之间亦存在内在联系. 有科学家认为, 超快退磁时间与阻尼因子成正比时, 超快退磁过程是磁性材料内禀的自旋翻转机制起主导, 反比时是非局域自旋输运引起超快退磁过程<sup>[77]</sup>, 这与电子是带内跃迁 (Fermi surface breathing model) 还是带间跃迁 (Fermi surface bubbling model) 相关 (图 6); 但也有实验得到阻尼因子与超快退磁时间无关<sup>[78]</sup>, 即主导超快退磁过程另有原因. 因此探索退磁时间与阻尼因子之间的关系, 可以判断该体系的退磁机理.

在 Co/Ni 铁磁耦合的双层膜体系中, 发现超快退磁时间与阻尼因子呈现出线性的正比关系 (图 7(a)), 与费米呼吸模型的理论结果相吻合<sup>[79]</sup>.

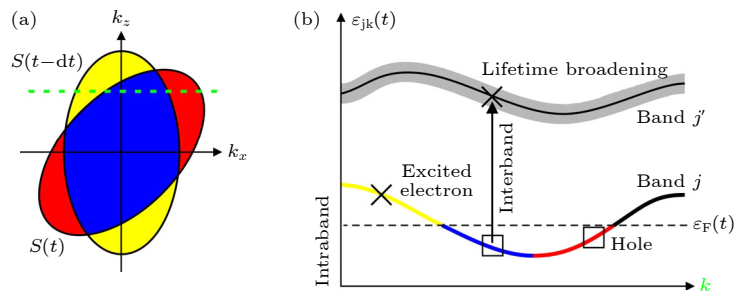


图 6 费米面呼吸以及冒泡模型 (a) 描述不同时刻的费米面的形状, 费米面呼吸模型; (b) 带间跃迁和带内跃迁<sup>[77]</sup>

Fig. 6. Fermi surface breathing model and bubbling model: (a) A sketch of the Fermi surface at different times; (b) the intraband and interband transition<sup>[77]</sup>.

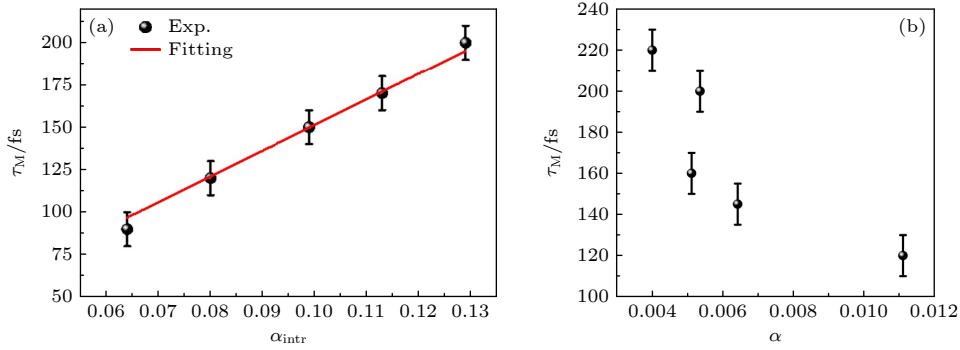


图 7 超快退磁时间与阻尼因子的关系 (a) Co/Ni 双层膜的超快退磁时间与阻尼因子的正比关系<sup>[79]</sup>; (b) FeGa/IrMn 双层膜的超快退磁时间与阻尼因子的反比关系<sup>[80]</sup>

Fig. 7. Relationship between the ultrafast demagnetization time and damping: (a) The ultrafast demagnetization time is in direct proportion to the damping in the Co/Ni bilayer<sup>[79]</sup>; (b) the ultrafast demagnetization time is inversely proportional to the damping in the FeGa/IrMn bilayer<sup>[80]</sup>.

在此体系中, 正比的关系认为超快退磁的发生是材料内禀的自旋翻转机制起主导作用; 另外, 在 FeGa/IrMn 交换偏置双层膜结构中, 纳秒时间尺度下的阻尼因子具有随反铁磁 IrMn 厚度的增大先增大后减小的趋势, 而在飞秒时间尺度下, 发现超快退磁时间与阻尼因子呈现出反比的关系(图 7(b))<sup>[80]</sup>. 这是铁磁与反铁磁界面处的自旋泵浦效应带来的, 当 IrMn 很薄时, 交换偏置未完全建立, 界面处与混乱状态, IrMn 层只有对自旋流的吸收效果, 阻尼因子逐渐增大; 当 IrMn 厚度达到一定程度后, 反铁磁序建立起来, 此时反铁磁层既吸收自旋流, 又向铁磁层泵浦自旋流, 导致阻尼因子下降. 在飞秒尺度下, 超快自旋流也有类似的效果, 因此产生阻尼因子与超快退磁时间成反比的关系, 即界面处的横向自旋流产生超快退磁.

### 2.2.3 超快退磁的各向异性

超快自旋动力学是否具有各向异性依旧是一个具有争议的话题, 在众多体系中, 目前还没有关于超快退磁过程具有各向异性的报道, 但在磁恢复阶段可以产生各向异性. 例如, Unikandanunni 等<sup>[81]</sup>在 Co(1100) 薄膜中发现了难轴与易轴磁恢复阶段存在的差异. 他们认为, 在该薄膜中, Elliott-Yafet 散射机制起到主导作用, 并在超快反射率测量中, 发现该体系具有各向异性的电声耦合(图 8(a)), 因此导致各向异性的磁恢复<sup>[81]</sup>. 另外, 由于超快退磁时间与阻尼因子之间有一定的关系, 所以阻尼因子的各向异性可能会带来超快退磁的各向异性. 但是, Xia 等<sup>[78]</sup>在具有各向异性阻尼的 CoFe 合金中却发现了各向同性的超快退磁过程. 因此对于超快

退磁是否存在各向异性以及调控的手段, 目前还需要进一步的探索.

Yang 等<sup>[82]</sup>在 Fe/GeTe 中发现各向异性阻尼因子, 其起源是由于 GeTe 中自旋能带结构的各向异性劈裂(图 8(b)—(d)). 另外, 已经有报道称<sup>[57]</sup>, 拓扑绝缘体的表面态可以加速超快退磁过程, 但是对于存在能带结构各向异性的体系, 是否会引起各向异性超快退磁还有待进一步探索.

综上所述, 无论是超快退磁过程的机理、超快退磁与阻尼因子之间的关系还是超快退磁的各向异性与能带结构, 都需要探索结合超快退磁物理过程以及材料时间分辨的自旋能带结构进行测量, 甚至更短的时间尺度下的超快自旋动力学, 从磁性起源的角度去探索各种相互作用对超快退磁过程的影响, 才能进一步理解超快退磁及其他超快的过程, 而这些问题需要阿秒时间分辨的技术.

## 3 阿秒磁学研究的机遇与挑战

在过去超快自旋动力学的发展中, 科学家们已经逐步意识到, 深刻理解超快自旋动力学的物理过程, 急需阿秒时间尺度下的自旋分辨、多磁性元素材料体系中磁性元素分辨的能带结构的动力学信息, 因为磁有序的交流相互作用所对应的的时间尺度在飞秒到阿秒量级, 因此可以利用阿秒脉冲激光探索自旋有序起源, 拓展磁性量子理论.

在电子学器件中, 时钟频率在 GHz 量级, 而这在过去的二十年中并没有发生改变<sup>[83]</sup>. 阿秒磁学的研究, 也是探索自旋翻转的极限, 为开发超快信息器件提供底层物理基础.



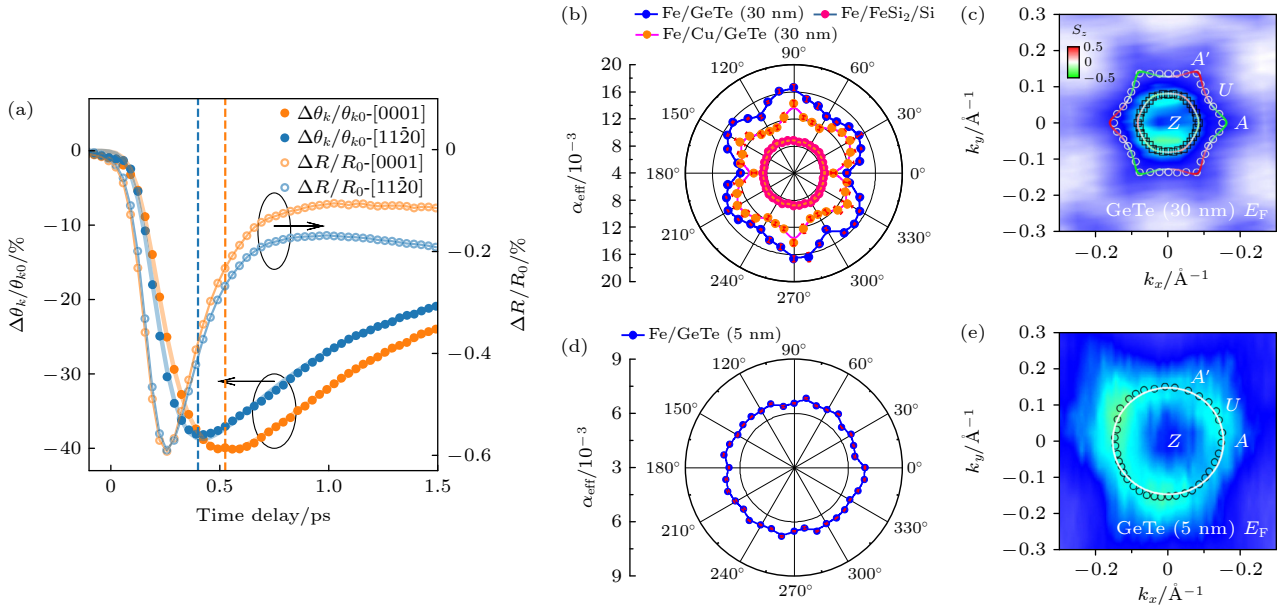


图 8 (a) Co 薄膜中的各向异性超快自旋动力学<sup>[81]</sup>; (b), (c) Fe/GeTe (30 nm) 的各向异性阻尼因子与各向异性能带结构; (d), (e) Fe/GeTe (5 nm) 的各向同性阻尼因子以及各向同性的能带劈裂<sup>[82]</sup>

Fig. 8. (a) Anisotropic ultrafast spin dynamics in Co thin film<sup>[81]</sup>; (b), (c) the anisotropic damping and splitting band structures of Fe/GeTe (30 nm); (d), (e) the isotropic damping and band structure of Fe/GeTe (5 nm)<sup>[82]</sup>.

### 3.1 阿秒脉冲激光的产生

研究阿秒时间尺度下的自旋动力学需要对激光技术进行发展, 现在可以实现超短 (几十阿秒)<sup>[84-86]</sup>、超强 ( $\sim 250$  nJ) 的阿秒脉冲<sup>[87-89]</sup>. 阿秒脉冲的一种常见的产生方法是将飞秒激光聚焦在惰性气体靶上, 使得惰性气体发生电离-加速-与离子复合的三步过程<sup>[90]</sup>, 大量参与反应的原子辐射出的高次谐波光子就形成一个光脉冲 (图 9). 由于飞秒激光的半个光周期是一个到几个飞秒, 而且极紫外波段的光谱可以支持超短脉冲, 因此所产生的高次谐波光脉冲就到了亚飞秒或者说阿秒时间尺度. 通常使用的飞秒激光脉冲包含几个到几十个光周期, 就会产生几个到几十个阿秒脉冲, 即阿秒脉冲串<sup>[91]</sup>.

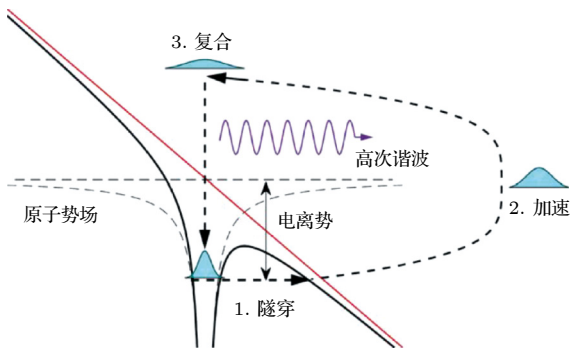


图 9 高次谐波的准经典三步模型<sup>[90]</sup>

Fig. 9. Quasi-classical three-step model of higher harmonics<sup>[90]</sup>.

### 3.2 阿秒磁学研究的机遇

物质的磁性起源于电子间的交换作用, 交换作用的有效距离在  $10^{-10}$ — $10^{-9}$  m 范围, 时间尺度在阿秒到飞秒量级. 阿秒激光具有高光子能量和超短脉宽的特点, 使研究阿秒时间下超快自旋动力学成为可能. 目前已知的探测手段, 仅有阿秒激光脉冲能够测量电子自旋的直接的交换作用, 因此阿秒磁学是磁学学科未来发展的机遇.

利用惰性气体靶产生的阿秒激光脉冲的光子能量在几十到百电子伏特<sup>[84,91,92]</sup>, 而此光子能量范围恰好覆盖了常见的 3d 过渡族磁性元素的  $M_{2,3}$  边的能量, 如表 1 所列. 因此结合所测试的样品, 可以选择性激发不同的磁性元素, 探索在彼此之间的角动量转移以及阿秒时间尺度下对磁性变化的贡献.

2019 年, Siegrist 等<sup>[13]</sup> 采用泵浦-探测方法, 利用脉宽为 310 as 的极紫外激光首次在 Ni/Pt 多层膜体系中实现了阿秒时间分辨磁圆二色性的测量,

表 1 常见的 3d 过渡族元素的  $M_{2,3}$  边的能量

Table 1. The  $M_{2,3}$  energies for 3d elements.

| 元素 | $M_{2,3}$ 边能量/eV | 元素 | $M_{2,3}$ 边能量/eV |
|----|------------------|----|------------------|
| Sc | 32               | Fe | 54               |
| Ti | 35               | Co | 60               |
| V  | 38               | Ni | 68               |
| Cr | 42               | Cu | 74               |
| Mn | 49               | Zn | 87               |

并利用阿秒脉冲的电场部分实现了磁性的调控. 这份工作的报道, 充分证明了阿秒磁学的可能性. 已有理论工作给出,  $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$  中角动量转移给手性声子仅需 250 as<sup>[93]</sup>; 同时, 在  $\text{Co}_2\text{MnGe}$ ,  $\text{Co}_2\text{MnGa}$ , Ni 等磁性材料中, 发现光诱导的超快退磁在飞秒至阿秒时间尺度, 并且认为超快退磁过程与电子能带结构息息相关<sup>[94-97]</sup>. 目前, 关于阿秒磁学的研究刚刚开始, 阿秒量级的相关磁效应还有待科学工作者逐步探索.

### 3.3 阿秒磁学所面临的挑战

虽然阿秒自旋动力学可以为我们打开理解磁性起源的大门, 但是阿秒脉冲技术本身、阿秒脉冲与固体材料的相互作用依旧充满未知与挑战, 需要诸多科研工作者不断的努力与突破. 下面总结了三点阿秒磁学所面临的挑战.

#### 3.3.1 时间分辨率与能量分辨率的兼顾

根据海森伯不确定原理,  $\Delta E \cdot \Delta t \geq h \sim 1 \text{ eV} \cdot \text{fs}$ ,

即当激光脉冲宽度为 1 fs 时对应能量的展宽约 1 eV. 当激光脉冲宽度为阿秒量级, 将会带来几十电子伏特的能量展宽. 因此, 在进行自旋分辨的光电子能谱测试时, 面对实际的磁性材料, 需要根据其特征结构来平衡脉宽与能量分辨率之间的关系. 目前, 利用双光子干涉的阿秒拍频重构 (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions, RABBITT) 方法可以实现阿秒量级的时间分辨 (图 10<sup>[98]</sup>). Tao 等<sup>[94]</sup> 利用 RABBITT 方法在 Ni 材料中实现了阿秒时间分辨的能带结构测量.

#### 3.3.2 兼顾单光子能量以及光子通量

由于阿秒脉冲激光为高次谐波的方式产生, 高次谐波主要呈现出以下特点<sup>[99]</sup>: 1) 高次谐波随着谐波阶数增加, 频谱范围向 UV, XUV 甚至软 X 射线波段延伸; 2) 光谱结构由一系列奇次谐波对应的分立尖峰组成, 相邻阶次的频率间隔为驱动光频率的 2 倍; 3) 高次谐波谱根据强度随阶次的

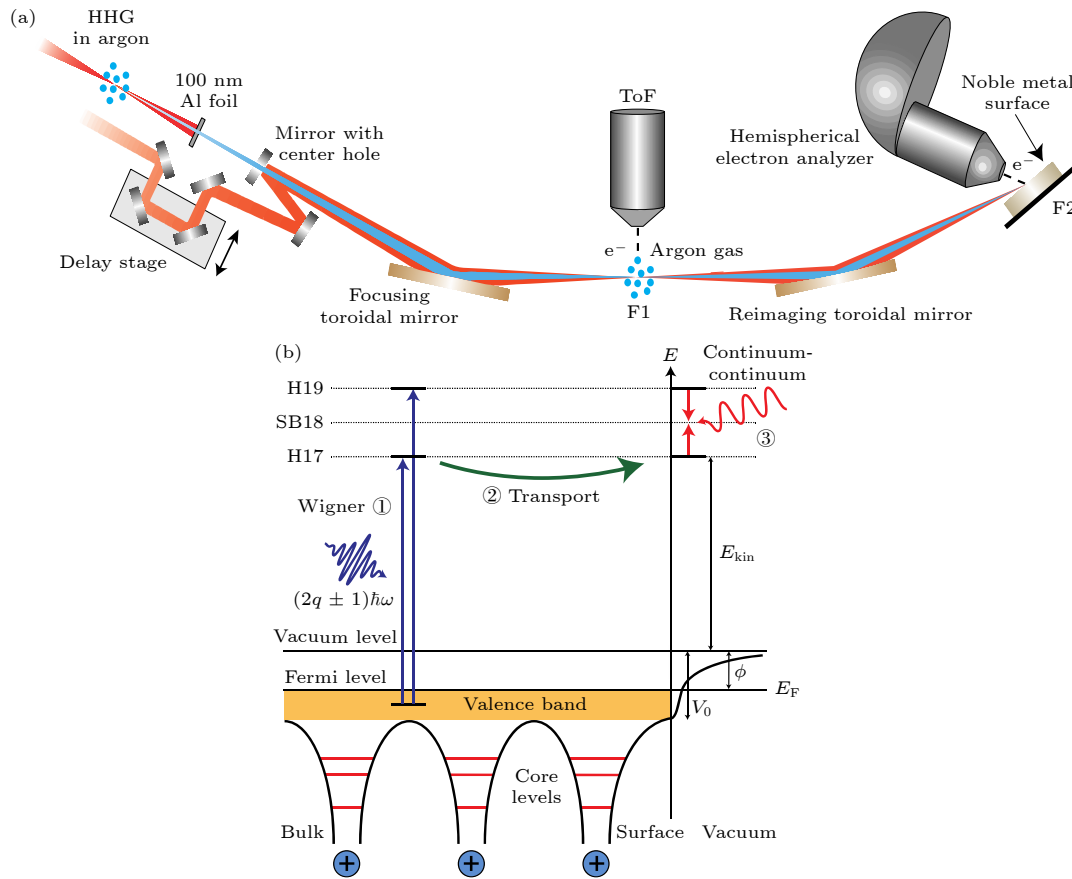


图 10 RABBITT 方法实现阿秒时间分辨的电子动力学 (a) 利用 RABBITT 实现阿秒时间分辨的光电子能谱装置<sup>[98]</sup>; (b) RABBITT 的过程示意图<sup>[98]</sup>

Fig. 10. Attosecond time resolution electrons dynamics by RABBITT method: (a) Schematic illustration of the photoemission spectrum with attosecond time resolution by RABBITT method<sup>[98]</sup>; (b) schematic representation of the three steps of RABBITT<sup>[98]</sup>.

变化可分为 3 个区域: 一是微扰区高次谐波强度随谐波阶次的增加快速下降, 二是平台区谐波强度几乎不随谐波阶次增加而变化, 形成一个稳定的平台区域; 三是截止频率区域, 该区域的谐波随阶次增加迅速消失, 此区域会有高的光子能量, 但光子通量随之降低 (图 11). 类比角分辨光电子能谱的气体电离放电光源, 其拥有  $1 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$  的光子通量<sup>[100]</sup>, 目前先进的阿秒脉冲, 光子通量为  $1 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ . 光子能量是进行元素分辨的关键, 但高的光子能量带来的低光子通量是需要平衡的重要因素.

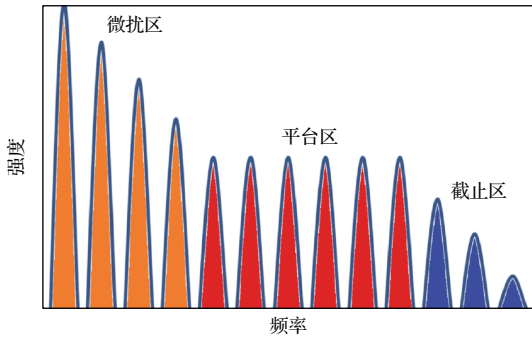


图 11 高次谐波的典型特征

Fig. 11. Typical character of the high Harmonic generation.

### 3.3.3 激光电场强度对自旋相干控制与探测

针对磁性材料以及自旋电子材料, 对自旋态的有效调控是当今磁学或自旋电子学的研究重点, 也是科学家们的兴趣所在和实现器件功能的底层物理机制. 以往的研究表明, 超快激光与物质发生相互作用时, 光子首先与电子发生相互作用, 与自旋的相互作用为高阶效应, 物质的磁性只能间接地在更长的时间尺度上受到影响<sup>[101]</sup>. Siegrist 等<sup>[13]</sup>在 Ni/Pt 多层膜体系中实现了阿秒时间分辨磁圆二色性的测量, 利用阿秒脉冲的电场部分实现了对磁性的相干调控, 使得磁性的响应时间减小了两个数量级. 因此, 利用阿秒脉冲激光的电场, 可能会导致其与自旋产生更强的相互作用, 进一步地加快对自旋的操控时间. 阿秒磁学可能会打破人们对超快退磁时间尺度的认知, 目前利用飞秒激光看到的超快退磁时间是否为真正的超快退磁过程, 该时间尺度的探索是否受限于激光本身的分辨能力, 因此, 利用阿秒脉冲激光有望探索超快退磁阶段发生的物理过程, 揭示超快退磁的时间极限. 但是, 如何实现阿秒激光对磁性材料的自旋相干调控, 且该调控手段是否受限于材料体系, 目前处于未知的状

态, 需要未来进一步的探索.

## 4 超快自旋动力学的总结与展望

超快自旋动力学是一个迷人又充满挑战的领域, 也是激光技术与磁学的交叉结合. 从纳秒时间尺度到如今的阿秒时间尺度的自旋动力学的探索, 为深入理解磁性材料的相互作用、不同的物理过程以及超快自旋电子学器件的开发带来了深远影响. 从 1996 年发现飞秒时间尺度下的超快退磁现象到今天, 各种自旋电子材料体系的超快退磁、全光学磁翻转以及 THz 动力学的研究, 对超快自旋动力学的理论框架的建立、超快自旋电子学器件的发展提供了诸多理论与实验的基础.

相较于飞秒磁学, 发展在阿秒时间尺度下的超快自旋动力学理论, 有望探索磁有序的根本起源, 突破现有磁性量子理论的框架; 同时, 探索利用阿秒激光脉冲相干调控电子自旋态的全新技术, 最终达到光子与自旋相互作用时间的物理极限, 发展实空间与动量空间分辨、过渡族磁性元素分辨、自旋和轨道磁矩分辨的探测手段, 对深入理解磁性起源、揭示角动量在超快时间尺度下的转移过程、进一步将超快自旋动力学过程推入微观层面, 可完善超快自旋动力学的理论框架. 最后, 利用超快激光与磁性材料的相互作用, 可发展探索电子自旋超快操纵技术, 开发新一代超快信息存储器件.

**成昭华**, 中国科学院物理研究所研究员, 博士生导师, 磁性纳米结构与飞秒磁性课题组组长. 1996 年获中国科学院物理研究所博士学位, 1996—1998 年作为洪堡学者在德国马普金属所工作, 1999—2000 年在加拿大 Dalhousie 大学物理系工作, 2000 年 8 月—至今在中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室工作, 2001 年获国家杰出青年基金, 曾任北京凝聚态物理国家实验室 (筹) 磁学研究部主任, 磁学国家重点实验室主任. 从 1990 年开始, 一直从事磁性纳米结构与飞秒磁学、自旋电子学、新型间隙稀土永磁材料、微波磁性和穆斯堡尔谱学等磁学前沿领域的研究. 主持国家科技部 973 项目、国家重大科研仪器研制项目、国家自然科学基金重点项目和中国科学院重大设备研制项目等多项. 在 *Nature Commun.*, *Adv. Mater.*, *Phys. Rev. Lett.*, *Nano. Lett.*, *PNAS* 等国际主要学术刊物上发表论文 300 余篇, 被他人引用 5000 余次. 申请国家发明专利 3 项. 获 2006 年第九届中国青年科技奖, 2005 年北京市科学技术一等奖, 1997 年中国物理学会叶企孙物理奖、国家教委科技进步二等奖和甘肃省科技进步二等奖. 目前主要学术兼职包括中国电子学会理事、会士、应用磁学分会主任委员,



中国稀土学会稀土永磁专业委员会副主任委员, 中国核物理学会穆斯堡尔专业委员会副主任委员, 中国物理学会磁学专业委员会秘书长和 IEEE Magnetic Society Senior Member 等.

## 参考文献

- [1] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [2] Walowski J, Münzenberg M 2016 *J. Appl. Phys.* **120** 140901
- [3] Farle M 1998 *Rep. Prog. Phys.* **61** 755
- [4] Kambersky V 1976 *Czech. J. Phys. B* **26** 1366
- [5] Beaurepaire E, Merle J C, Daunois A, Bigot J Y 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 4250
- [6] Stanciu C D, Hansteen F, Kimel A V, Kirilyuk A, Tsukamoto A, Itoh A, Rasing T 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 047601
- [7] Lambert C H, Mangin S, Varaprasad B S D C S, Takahashi Y K, Hehn M, Cinchetti M, Malinowski G, Hono K, Fainman Y, Aeschlimann M, Fullerton E E 2014 *Science* **345** 1337
- [8] Igarashi J, Zhang W, Remy Q, Diaz E, Lin J X, Hohlfield J, Hehn M, Mangin S, Gorchon J, Malinowski G 2023 *Nat. Mater.* **22** 725
- [9] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Costa J D, Freimuth F, Paz E, Ventura J, Freitas P P, Blugel S, Mokrousov Y, Rasing T, Kimel A V 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 455
- [10] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [11] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lomprk L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B-At. Mol. Opt.* **21** L31
- [12] Nisoli M, Sansone G 2009 *Prog. Quant. Electron.* **33** 17
- [13] Siegrist F, Gessner J A, Ossiander M, Denker C, Chang Y P, Schroder M C, Guggenmos A, Cui Y, Walowski J, Martens U, Dewhurst J K, Kleineberg U, Münzenberg M, Sharma S, Schultze M 2019 *Nature* **571** 240
- [14] Li Y, Li Y, Liu Q, Xie Z K, Vetter E, Yuan Z, He W, Liu H L, Sun D L, Xia K, Yu W, Sun Y B, Zhao J J, Zhang X Q, Cheng Z H 2019 *New J. Phys.* **21** 103040
- [15] Tserkovnyak Y, Brataas A, Bauer G E 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 117601
- [16] Katine J A, Albert F J, Buhrman R A 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3149
- [17] Ralph D C, Stiles M D 2008 *J. Magn. Magn. Mater.* **320** 1190
- [18] Soumyanarayanan A, Reyren N, Fert A, Panagopoulos C 2016 *Nature* **539** 509
- [19] Xiao D, Chang M C, Niu Q 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 1959
- [20] Yang S A 2016 *Spin* **06** 1640003
- [21] Chen Y L, Analytis J G, Chu J H, Liu Z K, Mo S K, Qi X L, Zhang H J, Lu D H, Dai X, Fang Z, Zhang S C, Fisher I R, Hussain Z, Shen Z X 2009 *Science* **325** 178
- [22] Di Sante D, Barone P, Bertacco R, Picozzi S 2013 *Adv. Mater.* **25** 509
- [23] Manchon A, Koo H C, Nitta J, Frolov S M, Duine R A 2015 *Nat. Mater.* **14** 871
- [24] Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, Back C H, Jungwirth T 2015 *Rev Mod Phys* **87** 1213
- [25] Neubauer A, Pfeleiderer C, Binz B, Rosch A, Ritz R, Niklowitz P G, Boni P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 186602
- [26] Yu X Z, Kanazawa N, Onose Y, Kimoto K, Zhang W Z, Ishiwata S, Matsui Y, Tokura Y 2011 *Nat. Mater.* **10** 106
- [27] Zhou C, Liu Y P, Wang Z, Ma S J, Jia M W, Wu R Q, Zhou L, Zhang W, Liu M K, Wu Y Z, Qi J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 086801
- [28] Zutic I, Fabian J, Das Sarma S 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323
- [29] Baibich M N, Broto J M, Fert A, Nguyen Van Dau F, Petroff F, Etienne P, Creuzet G, Friederich A, Chazelas J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [30] Binash G, Grunberg P, Saurenbach F, Zinn W 1989 *Phys. Rev. B Condens. Matter.* **39** 4828
- [31] Hashimoto S, Ochiai Y 1990 *J. Magn. Magn. Mater.* **88** 211
- [32] Cheng Z H, He W, Zhang X Q, Sun D L, Du H F, Wu Q, Ye J, Fang Y P, Liu H L 2015 *Chin. Phys. B* **24** 077505
- [33] Walowski J, Muller G, Djordjevic M, Münzenberg M, Klaui M, Vaz C A, Bland J A 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 237401
- [34] Radu I, Woltersdorf G, Kiessling M, Melnikov A, Bovensiepen U, Thiele J U, Back C H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 117201
- [35] Guidoni L, Beaurepaire E, Bigot J Y 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 017401
- [36] Graves C E, Reid A H, Wang T, et al. 2013 *Nat. Mater.* **12** 293
- [37] Bartelt A F, Comin A, Feng J, Nasiatka J R, Eimüller T, Ludescher B, Schütz G, Padmore H A, Young A T, Scholl A 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 162503
- [38] Li Y, Zhang W, Li N, Sun R, Tang J, Gong Z Z, Li Y, Yang X, Xie Z K, Gul Q, Zhang X Q, He W, Cheng Z H 2019 *J. Phys. Condens. Mat.* **31** 305802
- [39] Zhang Q, Nurmikko A V, Miao G X, Xiao G, Gupta A 2006 *Phys. Rev. B* **74** 064414
- [40] Muller G M, Walowski J, Djordjevic M, Miao G X, Gupta A, Ramos A V, Gehrke K, Moshnyaga V, Samwer K, Schmalhorst J, Thomas A, Hutten A, Reiss G, Moodera J S, Münzenberg M 2009 *Nat. Mater.* **8** 56
- [41] Lu X Y, Lin Z Y, Pi H Q, Zhang T, Li G Q, Gong Y T, Yan Y, Ruan X Z, Li Y, Zhang H, Li L, He L, Wu J, Zhang R, Weng H M, Zeng C G, Xu Y B 2024 *Nat. Commun.* **15** 2410
- [42] Lichtenberg T, Schippers C F, van Kooten S C P, Evers S G F, Barcones B, Guimarães M H D, Koopmans B 2022 *2D Mater.* **10** 015008
- [43] Wu N, Zhang S J, Chen D Q, Wang Y X, Meng S 2024 *Nat. Commun.* **15** 2804
- [44] Khela M, Da Browski M, Khan S, Keatley P S, Verzhbitskiy I, Eda G, Hicken R J, Kurebayashi H, Santos E J G 2023 *Nat. Commun.* **14** 1378
- [45] Sun T, Zhou C, Jiang Z Z, Li X M, Qiu K, Xiao R C, Liu C X, Ma Z W, Luo X, Sun Y P, Sheng Z G 2021 *2D Mater.* **8** 045040
- [46] Da Browski M, Guo S, Strungaru M, Keatley P S, Withers F, Santos E J G, Hicken R J 2022 *Nat. Commun.* **13** 5976
- [47] Lee W J, Fernandez-Mulligan S, Tan H X, Yan C H, Guan Y D, Lee S H, Mei R B, Liu C X, Yan B H, Mao Z Q, Yang S L 2023 *Nat. Phys.* **19** 950
- [48] Padmanabhan H, Stoica V A, Kim P K, Poore M, Yang T N, Shen X Z, Reid A H, Lin M F, Park S, Yang J, Wang H Y, Koocher N Z, Puggioni D, Georgescu A B, Min L J, Lee S H, Mao Z Q, Rondinelli J M, Lindenberg A M, Chen L Q, Wang X J, Averitt R D, Freeland J W, Gopalan V 2022 *Adv. Mater.* **34** 2202841
- [49] Bartram F M, Leng Y C, Wang Y, Liu L, Chen X, Peng H, Li H, Yu P, Wu Y, Lin M L, Zhang J, Tan P H, Yang L 2022 *npj Quantum. Mater.* **7** 84

- [50] Evans R F L, Fan W J, Chureemart P, Ostler T A, Ellis M O A, Chantrell R W 2014 *J. Phys. Condens. Matter.* **26** 103202
- [51] Atxitia U, Chubykalo-Fesenko O 2011 *Phys. Rev. B* **84** 144414
- [52] Koopmans B, Ruigrok J J, Longa F D, de Jonge W J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 267207
- [53] Koopmans B, Malinowski G, Dalla Longa F, Steiauf D, Fahnle M, Roth T, Cinchetti M, Aeschlimann M 2010 *Nat. Mater.* **9** 259
- [54] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [55] Malinowski G, Dalla Longa F, Rietjens J H H, Paluskar P V, Huijink R, Swagten H J M, Koopmans B 2008 *Nat. Phys.* **4** 855
- [56] Schellekens A J, Kuiper K C, de Wit R R J C, Koopmans B 2014 *Nat. Commun.* **5** 4333
- [57] Li N, Sun Y B, Sun R, Yang X, Zhang W, Xie Z K, Liu J N, Li Y, Li Y, Gong Z Z, Zhang X Q, He W, Cheng Z H 2022 *Phys. Rev. B* **105** 144415
- [58] Hou Y S, Wu R Q 2019 *Phys. Rev. Appl.* **11** 054032
- [59] Gong Z H, Zhang W, Liu J N, Xie Z K, Yang X, Tang J, Du H F, Li N, Zhang X Q, He W, Cheng Z H 2023 *Phys. Rev. B* **107** 144429
- [60] Zhang X C, Shkurinov A, Zhang Y 2017 *Nat. Photonics* **11** 16
- [61] Pawar A Y, Sonawane D D, Erande K B, Derle D V 2013 *Drug. Invent. Today* **5** 157
- [62] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, Eilers G, Notzold J, Mahrlein S, Zbarsky V, Freimuth F, Mokrousov Y, Blugel S, Wolf M, Radu I, Oppeneer P M, Munzenberg M 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 256
- [63] Hirsch J E 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1834
- [64] Kato Y K, Myers R C, Gossard A C, Awschalom D D 2004 *Science* **306** 1910
- [65] Ando K, Takahashi S, Harii K, Sasage K, Ieda J, Maekawa S, Saitoh E 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 036601
- [66] Rojas-Sanchez J C, Reyren N, Laczkowski P, Savero W, Attane J P, Deranlot C, Jamet M, George J M, Vila L, Jaffres H 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 106602
- [67] Sun R, Yang S J, Yang X, Vetter E, Sun D L, Li N, Su L, Li Y, Li Y, Gong Z Z, Xie Z K, Hou K Y, Gul Q, He W, Zhang X Q, Cheng Z H 2019 *Nano Lett.* **19** 4420
- [68] Sun R, Yang S J, Yang X, Kumar A, Vetter E, Xue W H, Li Y, Li N, Li Y, Zhang S H, Ge B H, Zhang X Q, He W, Kemper A F, Sun D, Cheng Z H 2020 *Adv. Mater.* **32** 2005315
- [69] Qiu H S, Zhou L, Zhang C, Wu J, Tian Y, Cheng S, Mi S, Zhao H, Zhang Q, Wu D, Jin B, Chen J, Wu P 2020 *Nat. Phys.* **17** 388
- [70] Tang J, Ke Y J, He W, Zhang X Q, Zhang W, Li N, Zhang Y S, Li Y, Cheng Z H 2018 *Adv. Mater.* **30** 1706439
- [71] Kuiper K C, Roth T, Schellekens A J, Schmitt O, Koopmans B, Cinchetti M, Aeschlimann M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 202402
- [72] Zhang G P, Hubner W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3025
- [73] Tauchert S R, Volkov M, Ehberger D, Kazenwadel D, Evers M, Lange H, Donges A, Book A, Kreuzpaintner W, Nowak U, Baum P 2022 *Nature* **602** 73
- [74] Ren Y, Zuo Y L, Si M S, Zhang Z Z, Jin Q Y, Zhou S M 2013 *Ieee T. Magn.* **49** 3159
- [75] Zhang Z, Wu D, Luan Z, Yuan H, Zhang Z, Zhao J, Zhao H, Chen L 2015 *IEEE Magn. Lett.* **6** 1
- [76] Woltersdorf G, Kiessling M, Meyer G, Thiele J U, Back C H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 257602
- [77] Gilmore K, Stiles M D, Seib J, Steiauf D, Fahnle M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 174414
- [78] Xia H, Zhao Z R, Zeng F L, Zhao H C, Shi J Y, Zheng Z, Shen X, He J, Ni G, Wu Y Z, Chen L Y, Zhao H B 2021 *Phys. Rev. B* **104** 024404
- [79] Zhang W, He W, Zhang X Q, Cheng Z H, Teng J, Fahnle M 2017 *Phys. Rev. B* **96** 220415
- [80] Zhang W, Liu Q, Yuan Z, Xia K, He W, Zhan Q F, Zhang X Q, Cheng Z H 2019 *Phys. Rev. B* **100** 104412
- [81] Unikandanunni V, Medapalli R, Fullerton E E, Carva K, Oppeneer P M, Bonetti S 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 232404
- [82] Yang X, Qiu L, Li Y, Xue H P, Liu J N, Sun R, Yang Q L, Gai X S, Wei Y S, Comstock A H, Sun D, Zhang X Q, He W, Hou Y, Cheng Z H 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 186703
- [83] Waldrop M M 2016 *Nature* **530** 144
- [84] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614
- [85] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Worner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [86] Zhao K, Zhang Q, Chini M, Wu Y, Wang X, Chang Z 2012 *Opt. Lett.* **37** 3891
- [87] Midorikawa K 2022 *Nat. Photonics* **16** 267
- [88] Xue B, Tamaru Y, Fu Y, Yuan H, Lan P, Mücke O D, Suda A, Midorikawa K, Takahashi E J 2020 *Sci. Adv.* **6** eaay2802
- [89] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nat. Photonics* **4** 875
- [90] Corkum P B, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [91] Popmintchev T, Chen M C, Arpin P, Murnane M M, Kapteyn H C 2010 *Nat. Photonics* **4** 822
- [92] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Ališauskas S, Andriukaitis G, Balčiūnas T, Mücke O D, Pugzlys A, Baltuška A, Shim B, Schrauth S E, Gaeta A, Hernández-García C, Plaja L, Becker A, Jaron-Becker A, Murnane M M, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [93] Li S, Wang R, Frauenheim T, He J 2024 *J. Phys. Chem. Lett.* **15** 5959
- [94] Tao Z, Chen C, Szilvási T, Keller M, Mavrikakis M, Kapteyn H, Murnane M 2016 *Science* **353** 62
- [95] Hofherr M, Häuser S, Dewhurst J K, Tengdin P, Sakshath S, Nembach H T, Weber S T, Shaw J M, Silva T J, Kapteyn H C, Cinchetti M, Rethfeld B, Murnane M M, Steil D, Stadtmüller B, Sharma S, Aeschlimann M, Mathias S 2020 *Sci. Adv.* **6** eaay8717
- [96] Ryan S a A, Johnsen P C, Elhanoty M F, Grafov A, Li N, Delin A, Markou A, Lesne E, Felser C, Eriksson O, Kapteyn H C, Grānāš O, Murnane M M 2023 *Sci. Adv.* **9** eadi1428
- [97] Tengdin P, Gentry C, Blonsky A, Zusin D, Gerrity M, Hellbrück L, Hofherr M, Shaw J, Kvashnin Y, Delczeg-Czirjak E K, Arora M, Nembach H, Silva T J, Mathias S, Aeschlimann M, Kapteyn H C, Thonig D, Koumpouras K, Eriksson O, Murnane M M 2020 *Sci. Adv.* **6** eaaz1100
- [98] Locher R, Castiglioni L, Lucchini M, Greif M, Gallmann L, Osterwalder J, Hengsberger M, Keller U 2015 *Optica* **2** 405
- [99] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [100] Chainani A, Yokoya T, Kiss T, Shin S 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 1966
- [101] Bigot J Y, Vomir M, Beaurepaire E 2009 *Nat. Phys.* **5** 515

INVITED REVIEW

# Ultrafast spin dynamics: From femtosecond magnetism to attosecond magnetism

Yang Xu<sup>1)2)</sup> Feng Hong-Mei<sup>1)</sup> Liu Jia-Nan<sup>2)3)</sup> Zhang Xiang-Qun<sup>2)</sup>  
He Wei<sup>2)</sup> Cheng Zhao-Hua<sup>1)2)3)†</sup>

1) (*Attosecond Science Center, Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

2) (*State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

( Received 8 May 2024; revised manuscript received 13 June 2024 )

## Abstract

Ultrafast spin dynamics is the study of the evolution of spin degrees of freedom on a time scale from picoseconds to attoseconds after being excited by an external field. With the development of laser technology, ultrafast spin dynamics has presented new opportunities for realizing ultrafast spintronic devices since 1996. However, despite decades of development, many aspects of femtosecond magnetism remain unclear. Understanding the parameters of these ultrafast spin dynamics processes requires experiments on an even faster timescale. Attosecond magnetism and the interaction of attosecond laser pulses with magnetic materials can reveal spin dynamics on a sub-femtosecond to attosecond time scale. In this review, we first introduce the significant research progress, including the mechanisms of ultrafast demagnetization, all-optical switching, ultrafast spin currents, and terahertz waves. Secondly, we analyze the problems in ultrafast spin dynamics, such as the unclear physical mechanisms of ultrafast demagnetization, the uncertain relationship between magnetic damping and ultrafast demagnetization time, and the unexplored anisotropic ultrafast demagnetization. Thirdly, we discuss the opportunities and challenges in attosecond magnetism. Finally, we analyze and discuss the future development and prospects of ultrafast spin dynamics.

**Keywords:** ultrafast spin dynamics, femtosecond magnetism, attosecond laser pulse, attosecond magnetism

**PACS:** 75.40.Gb, 75.70.Tj, 75.78.-n, 75.78.Jp

**DOI:** [10.7498/aps.73.20240646](https://doi.org/10.7498/aps.73.20240646)

---

† Corresponding author. E-mail: [zhcheng@iphy.ac.cn](mailto:zhcheng@iphy.ac.cn)





## 超快自旋动力学：从飞秒磁学到阿秒磁学

杨旭 冯红梅 刘佳南 张向群 何为 成昭华

### Ultrafast spin dynamics: From femtosecond magnetism to attosecond magnetism

Yang Xu Feng Hong-Mei Liu Jia-Nan Zhang Xiang-Qun He Wei Cheng Zhao-Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 157501 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240646

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240646>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

阿秒脉冲的发展及其在原子分子超快动力学中的应用

Development of attosecond pulses and their application to ultrafast dynamics of atoms and molecules

物理学报. 2023, 72(5): 053202 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222436>

$\text{Fe}_m\text{B}_{20}$  ( $m = 1, 2$ ) 团簇中超快自旋动力学的第一性原理研究

First-principles study of ultrafast spin dynamics in  $\text{Fe}_m\text{B}_{20}$  ( $m = 1, 2$ ) clusters

物理学报. 2021, 70(12): 127505 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210056>

NO分子形状共振阿秒动力学精密测量

Precise measurement of attosecond dynamics of NO molecular shape resonance

物理学报. 2022, 71(23): 233301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221735>

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

桌面飞秒极紫外光原子超快动力学实验装置

A tabletop experimental system for investigating ultrafast atomic dynamics based on femtosecond extreme ultraviolet photons

物理学报. 2020, 69(23): 234208 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201035>

高电荷态离子阿秒激光光谱研究展望

Prospect for attosecond laser spectra of highly charged ions

物理学报. 2023, 72(19): 193201 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230986>