

特约专栏

飞秒脉冲激光诱导超快自旋动力学研究进展

张 伟^{1,2}, 张晓强¹, 刘永山^{1,2}, 姜芸青^{1,2}, 许 涌^{1,2}, 赵巍胜^{1,2}

(1. 北京航空航天大学 合肥创新研究院, 安徽 合肥 230012)

(2. 北京航空航天大学集成电路科学与工程学院, 北京 100191)

摘 要: 当前, 由于自旋电子学器件的工作频率越来越高, 磁性材料中超快自旋动力学研究已经成为凝聚态物理领域的一大研究热点。同时, 飞秒脉冲激光泵浦磁性材料导致的超快自旋动力学现象蕴含丰富的物理内涵, 涉及到电子、声子和自旋在非平衡态下的量子多体相互作用等基本问题, 从而开辟了磁学研究的一个新方向——飞秒磁学。基于此, 系统综述了飞秒脉冲激光诱导超快自旋动力学的发展历程、实验装置、理论和实验研究的重要进展以及磁光领域的重要应用——全光学磁矩翻转效应。通过系统综述相关研究结果, 发现要想更准确、更深入地研究超快自旋动力学的微观机制, 还需要建立超越唯象的研究模型, 发展更直接的描述方法, 从而寻找具有高热稳定性、高自旋极化率、低功耗和高速存储等优点的新材料, 以期设计出具有超低能耗、超快响应的新型自旋电子学器件。

关键词: 磁性材料; 自旋动力学; 全光学磁矩翻转; 磁阻尼; 飞秒脉冲激光

中图分类号: TM271; O436.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2021)12-0963-09

Research Progress on Ultrafast Spin Dynamics Induced by Femtosecond Laser Pulse

ZHANG Wei^{1,2}, ZHANG Xiaoqiang¹, LIU Yongshan^{1,2}, JIANG Yunqing^{1,2},
XU Yong^{1,2}, ZHAO Weisheng^{1,2}

(1. Hefei Innovation Research Institute, Beihang University, Hefei 230012, China)

(2. School of Integrated Circuit Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

Abstract: Nowadays, the working frequency of spintronic devices becomes higher and higher, so that ultrafast spin dynamics in magnetic materials is as one of research focuses in condensed matter physics. Meanwhile, ultrafast spin dynamics in magnetic materials induced by femtosecond laser pulse is rich in physical meaning. It involves the basic problem of multi-particle quantum interaction among electrons, phonons and spins under non-equilibrium state. As a result, a new direction in magnetism has been founded as femtosecond-magnetism. Based on the above, the main progresses and important applications of ultrafast spin dynamics induced by femtosecond laser pulse were reviewed, including experimental equipments, theoretical and experimental models, as well as all-optical magnetization reversal effect. Therefore, in order to explore the micro-mechanism of ultrafast spin dynamics in a deeper level, a new research model should be established to develop direct descriptions. Furthermore, a crucial task is to find out new materials with high thermal stability, high spin polarization, low power consumption and high storage rate. Therefore, novel spintronic devices with low power consumption and ultrafast response could be designed in the near future.

Key words: magnetic materials; spin dynamics; all-optical magnetization reversal; damping; femtosecond laser pulse

1 前 言

磁存储技术对人类社会进入信息时代起到了直接的推动作用, 然而, 随着人工智能、大数据、物联网、云计算等新兴产业的进一步发展, 目前磁性调控技术已经不能满足这些领域对大容量存储和高速读写的要求。因此, 将信息装入越来越小的磁比特中, 同时越来越快地操纵这些磁比特将会成为磁存储技术的未来^[1]。一方

收稿日期: 2021-08-03 修回日期: 2021-11-08

基金项目: 国家自然科学基金项目(61627813, 12104030); 国家重点研发专项(2018YFB0407602)

第一作者: 张 伟, 男, 1989年生, 博士后

通讯作者: 许 涌, 男, 1987年生, 讲师, 硕士生导师,

Email: yongxu@buaa.edu.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.202107035

面,巨磁电阻效应的发现及其商业化,使信息记录密度从最初的 2×10^3 攀升到今天的 5×10^{11} bit/in²。2007 年,诺贝尔物理学奖正是授予了巨磁电阻效应的发现者——法国南巴黎大学 Albert Fert 与德国于利希研究中心 Peter Grünberg,以表彰其在高密度磁存储领域的突出贡献^[2];另一方面,还发展了一系列操纵磁比特的手段,主要包括磁场、应力、电压、电流等,进行数据的写入^[3,4]。然而,这些传统操纵手段所引起的磁矩翻转都属于“进动式”磁矩翻转,受到材料内禀自旋-晶格弛豫时间的制约,其磁矩翻转时间的下限约为 1 ns。另外,驱动磁矩翻转或磁畴运动所需的临界电流密度高达 10^{11} A/m² 量级,如此高能耗是制约电流驱动磁矩翻转自旋电子器件发展和应用的瓶颈问题之一。因此,针对未来超高密度、超低功耗、超快速率信息存储技术的需求,发展具有更快磁矩翻转时间和更低能耗的新型磁矩翻转方式是当前自旋电子学领域的迫切任务之一^[5-7]。超短脉冲激光技术提供了一种能够在飞秒时间尺度对自旋进行操纵和读写的新途径,引发了学术界和工业界的极大研究兴趣^[8]。

1996 年,法国斯特拉斯堡大学 Beaurepaire 等^[9]借助脉宽为 60 fs 的泵浦光进行时间分辨用于磁光克尔效应的测量,在 Ni 薄膜中发现了时间小于 1 ps 的超快退磁现象,首次将自旋对光的响应时间推进到飞秒时间尺度上,这一开创性工作具有里程碑式意义,并催生了凝聚态物理学研究中的一个新兴学科——飞秒磁学^[10,11]。随后,类似结果也被相继报道。德国柏林自由大学 Hohlfeld 等^[12]借助时间分辨的二次谐波效应,重复出了 Ni 薄膜中的超快退磁现象;同样来自德国柏林自由大学 Güdde 等^[13]在 Co 薄膜中实现了小于 50 fs 的超快退磁时间,同时发现若激光能量足够高,则可以实现完全退磁;德国于利希研究中心 Scholl 等^[14]采用自旋分辨的光电子发射谱观察到铁磁薄膜中的退磁分为两个过程:首先在几百飞秒内退磁约 20%,之后的退磁过程持续了几百皮秒。Scholl 等将这一现象总结为:前面 1 ps 之内的退磁是因为电子-电子相互作用的斯托纳(Stoner)粒子对激发导致的,而后面几百皮秒的退磁是由自旋-晶格弛豫时间决定的。除了典型的 3d 金属 Fe, Co, Ni 外,在过去 20 年里,超快退磁现象在多种不同体系中也陆续报道,如 NiFe、CoPt₃、GdFeCo、Fe/Gd、Co/Pt 等合金或异质结构^[15-20], CrO₂、Sr₂FeMoO₆、La_{1-x}Sr_xMnO₃ 等氧化物体系以及 InMnAs 等磁性半导体和 CoCr₂S、CuCr₂Se₄ 硫属化合物等^[21-25]。对于时间尺度在亚皮秒内的超快动力学行为,不同材料体系蕴含着非常丰富的物理内涵。

值得一提的是,由过渡族金属和稀土金属构成的合金材料中,除了超快退磁外,飞秒脉冲激光还能使磁性

材料实现无磁场、无电流辅助的超快磁矩翻转。2007 年,荷兰奈梅亨大学 Stanciu 等^[26]借助圆偏振飞秒脉冲激光首次在 GdFeCo 合金中实现了光诱导磁矩翻转。圆偏振激光可以实现磁矩翻转的原因之一是磁介质中的逆法拉第效应,即一束圆偏振光通过磁介质,由麦克斯韦方程组可知圆偏振光的电场部分会感生电流,而这个电流会产生静磁场。当然,对于脉宽为纳秒级的激光光束来讲,感生出的磁场实际上非常小,不足以产生足够大的影响。但是,若激光脉宽在飞秒量级,此时由逆法拉第效应产生的磁场足够大,足以导致磁矩翻转。到目前为止,磁存储方法依然是信息存储方面最有效的方法之一。各向异性强的材料被用作存储介质,强的各向异性可以抵抗热扰动,这是当前为数不多的可以确保磁比特稳定存在的方法,但各向异性过强会导致过高的写入磁场。因此,采用左旋和右旋圆偏振飞秒脉冲激光来操纵磁矩翻转,有望成为在纳米尺度上实现快速读写的新途径^[27]。

本文将介绍飞秒脉冲激光诱导自旋动力学的实验和理论发展过程,主要包括:该领域所采用的主要实验方法(时间分辨的磁光克尔效应)、主要理论模型以及几种典型实验的研究进展。另外,还将重点介绍具有潜在应用价值的全光学磁矩翻转现象的研究进展。

2 飞秒脉冲激光诱导自旋动力学的实验装置

磁光克尔技术具有高灵敏度、无损探测等优点,近年来成为表面磁学领域的重要研究方法。早在 1845 年,法拉第发现光穿过放置在磁场中的玻璃后,入射光偏振面发生了旋转,这是历史上发现的第一种磁光效应,被后人称作法拉第效应^[28]。1876 年,克尔发现光在不透明的磁性材料表面反射后,光偏振面也会发生旋转,此效应后被称作磁光克尔效应^[29]。随后,佛赫特效应、科顿-莫顿效应等磁光效应也相继被发现。在所有效应中,法拉第效应和克尔效应均与磁矩成正比,属于一阶磁光效应,强度较大,因此常被应用到实际磁测量中。其中,法拉第效应适用于透明磁性材料,克尔效应适用于不透明磁性材料。以超短脉冲激光为光源的泵浦探测实验是诸多研究材料超快动力学的基础手段之一,图 1 所示是基于时间分辨的磁光克尔技术的典型光路图。飞秒脉冲激光源发射 800 nm 的激光,经过偏硼酸钡(BBO)倍频晶体后,飞秒脉冲激光被分成泵浦光(红色)和探测光(绿色),两束光之间的光程差由延迟线精确控制。磁光克尔技术的主要优点是可以获得磁激发态随时间演化的信息。其基本原理是:用一束能量较高的超短脉冲激光作为泵浦光去激发样品,从而产生激发态粒子束布居,这样会使样品光学性质改变,然后用另一束较弱的超短脉

冲激光去探测这个变化,从而得到激发态的信息,逐渐增大探测光和泵浦光间的时间延迟就可以得到激发态随时间的演化过程。泵浦探测技术一般用于对磁性材料超快退磁、全光学磁矩翻转、自旋进动弛豫等物理过程的探测^[30-32]。

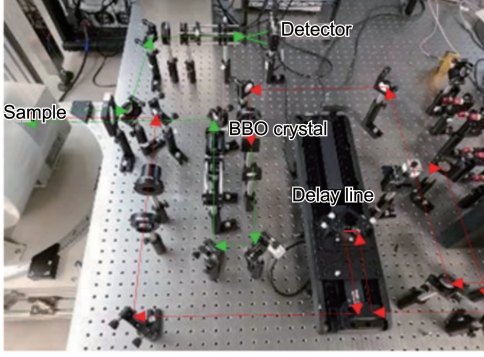


图 1 基于时间分辨的磁光克尔技术的光路图

Fig. 1 Optical path diagram of magneto-optical Kerr technology for time distinguishing

3 飞秒脉冲激光诱导自旋动力学的典型理论模型

3.1 三温度 (3TM) 模型

3TM 模型^[33]的实质是将动力学过程转化成一种热效应弛豫过程,将电子、声子、自旋看做 3 个热力学库,且三者之间存在耦合,在外界提供能量的情况下,三者的温度会发生变化,如图 2 所示。电子由于比热较小,快速热化而升高温度,带动晶格和自旋系统的温度变化,由于三者之间存在耦合,最终会弛豫到一个平衡态。常用式(1)中的 3 个微分方程来描述 3TM 模型:

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= -G_{e-p}(T_e - T_p) - G_{e-s}(T_e - T_s) + S(t) \\ C_p \frac{\partial T_p}{\partial t} &= -G_{e-p}(T_p - T_e) - G_{p-s}(T_p - T_s) \\ C_s \frac{\partial T_s}{\partial t} &= -G_{e-s}(T_s - T_e) - G_{s-p}(T_s - T_p) \end{aligned} \quad (1)$$

其中, C_e , C_p , C_s 分别表示电子、声子和自旋的比热容, G 表示三者之间的耦合强度, T_e , T_p , T_s 分别表示电子、声子和自旋的温度, $S(t)$ 表示激光作用。

基于 3TM 模型,经过飞秒脉冲激光激发后,电子、声子和自旋的温度变化如图 3 所示^[9]。可以看到, T_e 在 1 ps 内快速升高到体系的居里温度以上,并带动 T_s 在 1 ps 内上升,这就可以在唯象上解释超快退磁是由于温度升高导致的,最终 3 个热力学库会在几皮秒内达到一个准平衡态,对应超快退磁发生后有一个磁矩缓慢恢复的过程。该模型的优点在于,可以很容易地从唯象角度

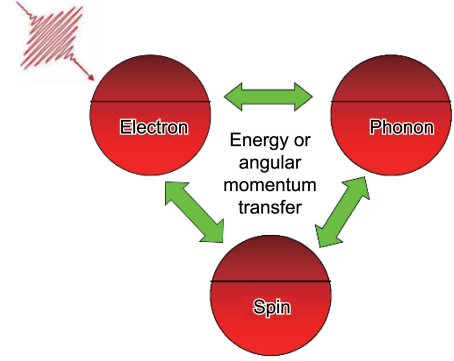


图 2 电子、声子和自旋三者间的能量或角动量转移示意图

Fig. 2 Illustration of energy or angular momentum transfer among electron, phonon and spin

去理解并接受超快退磁这一全新现象,直到现在,其依然对该领域的初学者起着至关重要的指导作用。但是,该模型也存在缺点:其一,只考虑能量在 3 个热力学库之间的转移过程,忽略了角动量的交换,而涉及到自旋变化,角动量比能量更为重要;其二,只给出自旋温度随时间的变化,并没有直接给出磁矩随时间的演化过程。而在高度非平衡态下,自旋温度其实已经失去了意义。

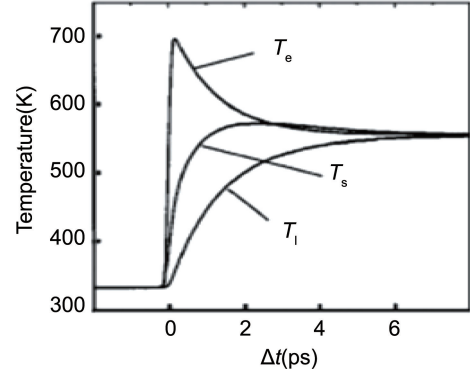


图 3 飞秒脉冲激光作用之后电子、声子和自旋的温度演化过程^[9]

Fig. 3 Temperature evolution of electrons, phonons and spins after femtosecond laser pulse excitation^[9]

3.2 原子尺度动力学模型

该模型以唯象的 Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程为基础^[34-36],内禀阻尼因子代表自旋、声子以及自旋和电子之间的耦合强度,故被认为代表角动量的耗散。另外,LLG 方程描述的是磁矩随时间的变化过程,直接给出了磁矩的动力学信息。LLG 方程如式(2)所示:

$$\frac{\partial \vec{S}_i}{\partial t} = -\frac{\gamma}{(1 + \lambda^2)} [\vec{S}_i \times \vec{H}_{\text{eff}} + \lambda \vec{S}_i \times (\vec{S}_i \times \vec{H}_{\text{eff}})] \quad (2)$$

其中, \vec{S}_i 是一个单位矢量,代表 i 位置的磁矩方向, γ 代表旋磁比, λ 代表微观阻尼因子, \vec{H}_{eff} 代表 i 位置的有效磁场。原子尺度的 LLG 方程代表 i 位置处的原子磁矩和

有效磁场间的相互作用,可由式(3)获得有效磁场:

$$\vec{H}_{\text{eff}} = -\frac{1}{\mu_s} \frac{\partial H}{\partial \vec{S}_i} \quad (3)$$

其中,自旋哈密顿量 $H = -\sum_{i \neq j} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - K_{\text{eff}} \sum_i (\vec{S}_i \cdot \vec{e})^2 - \sum_i \mu_s \vec{S}_i \cdot \vec{H}_{\text{app}}$, 右边第一项代表自旋交换相互作用,第二项代表等效各向异性,第三项代表塞曼能。式(2)是标准的 LLG 方程,考虑的都是 0 K 下,而这种情况下无法计算温度效应。为了模拟飞秒脉冲激光作用,需要引入朗之万动力学(Langevin dynamics)方法,即在每一个原子上面加上热扰动,热扰动是高斯形式的白噪音 $\Gamma(t)$,故每个原子上再附加一个热效应场 \vec{H}_{th} ,如式(4)所示:

$$\vec{H}_{\text{th}} = \Gamma(t) \sqrt{\frac{2\lambda k_B T}{\gamma \mu_s \Delta t}} \quad (4)$$

其中, k_B 为玻尔兹曼常数,此处最重要的参数是温度 T ,其数值是电-声子双温度模型计算得到的电子温度 T_e ,如式(5)所示:

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= -G_{e-p}(T_e - T_p) + S(t) \\ C_p \frac{\partial T_p}{\partial t} &= -G_{e-p}(T_p - T_e) \end{aligned} \quad (5)$$

以式(2)为基础,加上热效应场,对每个原子进行迭代运算,最后对大量原子进行统计平均就可以得出磁矩随时间的演化过程。该模型还具有元素分辨功能,已经被广泛用来模拟和分析全光学磁矩翻转过程^[37]。

3.3 微观三温度(M3TM)模型

与上述唯象的 3TM 模型相似,荷兰埃因霍温理工大学 Koopmans 教授团队^[38-40]提出的 M3TM 模型也是将整个研究体系分成电子、声子和自旋 3 个热力学库。但是,不同之处在于 M3TM 模型不仅考虑了能量在 3 个热力学库之间的转移,还考虑了角动量的耗散过程。这一模型使研究者们可以深入到微观角度,尤其是从电子散射角度理解超快退磁的物理机制。M3TM 模型认为, 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机制。在该机制中,自旋-轨道耦合作用非常重要,该作用使自旋态处于自旋向上和自旋向下状态的混合。正是由于这种混合态的存在,德国马克斯·普朗克智能系统研究所 Fähnle 等^[41]认为,电子在和声子发生散射的过程中,自旋方向会发生反转。M3TM 模型描述的超快退磁过程如式(6)所示:

$$\begin{aligned} \gamma T_e \frac{dT_e}{dt} &= \nabla_z (\kappa \nabla_z T_e) + g_{ep}(T_p - T_e) \\ C_p \frac{dT_p}{dt} &= g_{ep}(T_e - T_p) \\ \frac{dm}{dt} &= Rm \frac{T_p}{T_e} \left(1 - m \coth \left(\frac{mT_e}{T_e} \right) \right) \end{aligned} \quad (6)$$

其中, T_c 是居里温度, m 代表磁矩, T_e , T_p , m 都是 z 方向(薄膜厚度方向)的函数, g_{ep} 是电子-声子耦合系数,

κ 是电子的导热系数; $R = \frac{8a_{\text{sf}}g_{ep}k_B T_c^2 V_{\text{at}} \mu_B}{\mu_{\text{at}} E_D^2}$, 表示依赖材料体系的退磁速率, a_{sf} 是自旋翻转概率, V_{at} 是原子体积, μ_B 是玻尔磁子, μ_{at} 是原子磁矩, E_D 是德拜温度,其中 a_{sf} 最为重要。

式(6)解释了超快退磁领域一直存在的两步退磁现象^[42, 43],之所以会存在一步退磁和两步退磁现象,是由于不同体系的 T_c/μ_{at} 差异较大。例如, Gd 是一类典型的具有两步退磁现象的体系,其原子磁矩和居里温度分别是 $\mu_{\text{at}} = 7.55\mu_B$, $T_c = 297$ K, 故其 T_c/μ_{at} 值是 Ni 的 1/25。基于上述理论,可以将目前所有研究体系进行大致分类,如以 NiFe、CoPt₃、Fe/Gd、Co/Pt 等 3d 过渡族金属合金或多层膜为代表的第 I 类超快退磁体系,和以 TbFe、CrO₂、CoCr₂S₄、InMnAs 等稀土-过渡族合金、氧化物、稀磁半导体为代表的第 II 类超快退磁体系。

3.4 自旋超扩散模型

与前几种模型不同,自旋超扩散模型描述的是一种非局域的超快退磁机制^[44-48],如图 4 所示。第一步,携带能量的光子将电子激发到非平衡状态,同时在价带上会产生一个空穴,在超快尺度上空穴运动可以被忽略;第二步,被激发到高能态的电子开始运动,这种运动是各向同性的;第三步,在遇到第一次散射之前,电子运动是直线的,其速度主要由电子能量和材料本身决定,这一过程忽略了界面处的反射和外场效应;第四步,电子在运动过程中,有一定概率会发生碰撞或者散射。若电子与声子或杂质碰撞,这种碰撞属于完全弹性碰撞,电子不损失能量;若电子与电子碰撞,属于非弹性碰撞,电子损失能量。自旋依赖的电子输运过程在飞秒时间内符合弹道输运机制,在更长时间内符合扩散型输运机制。总之,由于多数自旋和少数自旋被激光激发之后的寿命不同,导致超快退磁的发生。

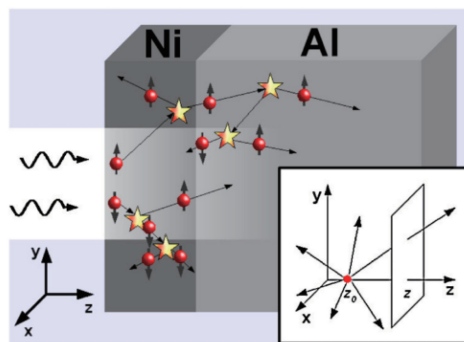


图 4 自旋超扩散模型示意图^[44]

Fig. 4 Illustration of spin super-diffusion model^[44]

4 超快自旋动力学机制的实验研究进展

除了在上述理论模型方面的工作外, 研究者在实验上也提出了多种不同机制试图去解释超快自旋动力学, 如电声耦合辅助的自旋翻转机制^[49]、电子-电子散射机制^[50]、电子-磁子散射机制^[51]、自旋-轨道耦合辅助的光子和自旋相互作用以及自旋、电子和光子三者间的相干作用等^[52-54], 以上几种都属于局域超快退磁机制。此外, 荷兰埃因霍温理工大学 Malinowski 等^[55]提出了飞秒脉冲激光诱导的自旋流输运在多层膜异质结构中主导了超快退磁过程。这是一种非局域的超快退磁机制, 可以借助自旋超扩散模型来解释。综上所述, 到目前为止, 研究者们提出了多种不同的物理图像去解释超快退磁现象, 但尚未形成统一的认识。

为了更好地理解飞秒脉冲激光诱导的超快自旋动力学的内在机理, 研究者们认为澄清材料内禀参数与超快自旋动力学过程的关系将有助于更好地理解其物理机制。如图 5 所示, 受到激光脉冲激发以后, 磁矩的动力学过程主要包括: 退磁、恢复和进动。基于此, Koopmans 等^[56]在理论上提出磁性材料的内禀阻尼因子决定了自旋角动量的耗散过程, 进而可以影响超快退磁的速度。随后, 德国哥廷根大学 Walowski 等^[57]研究了超快退磁时间和磁阻尼的关联, 但实验结果和理论预期完全相反, 其团队是在 3d 过渡族 NiFe 合金里面掺杂了稀土杂质。在稀土元素里面, 内层的 4f 电子提供了绝大部分磁矩, 而外层的 5d6s 电子对磁矩的贡献很少, 其中 4f 电子的超快退磁时间大概在几十皮秒。然而, 由于 4f 电子远离费米面, 飞秒脉冲激光首先与外层的 5d6s 电子发生作用, 再将能量传递到内层的 4f 电子, 故稀土元素的退磁是一个间接过程。如上文所述, 此类物质被称为第二类超快退磁体系。相比而言, 在 3d 过渡族金属中, 最外层的 3d 电子提供了磁矩, 且与激光直接发生作用, 其属于第一类超快退磁体系, 退磁时间在 1 ps 左右。由此可以预测, 若将 4f 稀土元素掺杂到 3d 过渡族金属中, 随着掺杂量的增加, 超快退磁时间一定会增加。另外, 大量实验和理论工作都已证明, 由于在 Gd, Ho 等 4f 稀土元素中存在所谓的“慢弛豫机制”, 随着掺杂量的增加, 3d 过渡族金属的阻尼因子也呈现增加的趋势。因此, Walowski 团队观察到的实验结果, 即超快退磁时间随着阻尼因子的增大而增大, 也就不足为奇。另外, 国内研究者们也对此问题展开了研究。同济大学周仕明等^[58]报道了在 TbFeCo 合金中超快退磁时间和材料阻尼因子成正相关关系; 复旦大学赵海斌等^[59]在 CoFeAl 合金中也得到了类似关系。这些都与 Koopmans 的理论预期相悖。过去几年, 作者团队在这方面也开展了一系列系统的研究工作。

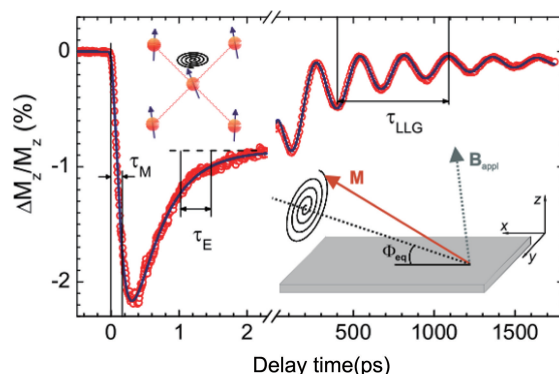


图 5 激光激发后超快退磁、恢复和进动的动力学过程^[56]

Fig. 5 Three dynamics processes including ultrafast demagnetization, recovery and spin precession after laser excitation^[56]

4.1 自旋轨道耦合作用对超快退磁的影响

作者团队在具有优异垂直各向异性的 Co/Ni 双层膜体系^[60]中, 采用用于时间分辨的磁光克尔技术分别测量了纳秒和亚皮秒时间尺度下的磁动力学过程, 分别得到了该体系的阻尼因子和超快退磁时间, 证实了二者之间呈线性正比关系, 这一结果和基于费米呼吸模型的理论计算非常吻合。同时, 给出了定量解释, 该体系的自旋翻转概率为 0.25, 远远大于单层的 Co 薄膜和 Ni 薄膜的, 这主要是因为 Co/Ni 界面处的强自旋轨道耦合效应^[61]。另外, 对于金属多层膜异质结构中的超快退磁机制, 往往既包含内禀自旋翻转的贡献, 同时也包含受激发的自旋依赖电子输运的贡献。作者团队提出, 通过研究超快退磁时间和阻尼因子的关系, 可以区分退磁过程中到底是哪一种机制起主导作用。例如, 若超快退磁时间和阻尼因子成正比关系, 则内禀自旋翻转机制起主导作用, 否则就是非局域的自旋依赖电子输运机制起主导作用。Co 和 Ni 都是 3d 过渡族磁性金属, 电子的弛豫发生在费米面附近, 两者的超快退磁机制一样。Co/Ni 双层膜体系和 Walowski 团队采用的掺杂稀土元素的 3d 过渡族金属体系完全不同, 后者负责提供绝大部分磁矩的是内层的 4f 电子, 但其远离费米面并不参与自旋翻转过程, 因此该体系同时引入两种超快退磁机制得到的结果是不可信的。然而, 作者团队选取 Co/Ni 双层膜体系避免了上述问题, 建立了真正的超快退磁时间和阻尼因子二者之间的关系。

4.2 自旋流效应对超快退磁的影响

作者团队研究了 FeGa/IrMn 交换偏置双层膜体系中超快退磁时间和阻尼因子之间的关系, 对于纳秒尺度的动力学过程, 阻尼因子随反铁磁层厚度的增大呈现先增大后减小的趋势^[62]。通过分析, 排除了铁磁材料内禀的自旋轨道效应、反铁磁引起的单轴各向异性和单向各

向异性等效应对阻尼因子的影响, 阻尼因子随着反铁磁层厚度的变化趋势归因于铁磁和反铁磁界面的自旋泵浦效应^[63-65]。作者团队提出, 在反铁磁层非常薄的情况下, 由于交换偏置并未建立, 界面处的反铁磁排列比较混乱, 此时反铁磁磁矩对铁磁泵浦的自旋流只有吸收作用; 界面耦合触发的反铁磁进动产生了由反铁磁向铁磁注入的自旋流, 由于相位混乱而被极大地抑制, 导致阻尼增大。然而, 当反铁磁层厚度增大到一定程度时, 其反铁磁序较好地建立起来, 此时反铁磁磁矩不但很好地吸收了由铁磁层泵浦过来的自旋流, 同时反铁磁进动会向铁磁注入自旋流, 从而导致阻尼下降。基于该模型, 第一性原理计算结果和作者团队的实验结果非常吻合。更重要的是, 作者团队测量了亚皮秒尺度上的超快退磁过程, 在实验上建立了超快退磁速率和阻尼因子呈线性正比关系, 即超快退磁时间和磁阻尼成反比。基于此, 作者团队提出界面处的横向自旋流机制是超快退磁机制之一。

4.3 费米面处态密度对超快退磁的影响

在 $\text{Co}_2\text{MnAl}_x\text{Si}_{1-x}$ Heusler 型合金中, 作者团队通过控制 Al 和 Si 的组分比例来调控费米面的位置^[66-68], 最终使其由金属性向半金属性转变。进一步, 研究了该合金的超快动力学行为, 其由金属性向半金属性转变的同时, 超快退磁逐渐变慢, 首次在实验上证实了超快退磁时间和自旋极化率成正比、与阻尼因子成反比的关系。这是首次系统地研究并且准确地建立了亚皮秒时间尺度下超快退磁和材料内禀属性之间的关联。

5 飞秒脉冲激光诱导超快自旋动力学的应用: 全光学磁矩翻转

除了研究飞秒脉冲激光诱导自旋动力学的物理机制外, 利用全光学磁矩翻转效应将稀土-过渡族合金作为基本的逻辑或存储单元构建自旋电子学器件, 已经成为当前自旋电子学领域研究的前沿和热点之一。稀土-过渡族合金材料, 如具有垂直各向异性的 GdFeCo 合金, 在飞秒脉冲激光的作用下会实现全光学磁矩翻转, 这一结果由荷兰奈梅亨大学 Rasing 教授团队在 2007 年首次发现^[26]。其团队报道了左旋/右旋偏振的飞秒脉冲激光能够在 GdFeCo 合金薄膜上写入向上/向下的磁畴, 如图 6 所示。更多的稀土-过渡族合金材料, 如 TbCo、TbFe、DyCo 等, 都被证明存在类似的翻转现象^[69-71]。2014 年, 法国科学研究中心 Mangin 和美国加州大学圣地亚哥分校 Fullerton 团队报道了 Co/Pt、Co/Ni 铁磁多层膜以及 FePt 颗粒膜中也存在全光学磁矩翻转现象^[71, 72]。这些报道为发展在超快时间尺度上操纵磁矩的新方法指明了方向。然而,

上述研究中所施加的都是多脉冲激光, 不同材料所需的脉冲数从几十到上百个不等。实际上, 采用多脉冲激光诱导磁矩翻转不利于未来器件的研制, 由于施加的激光脉冲数目越多会导致器件能耗越高, 且过多的热量积累会导致磁畴受到扰动, 向着热量积累的区域移动, 这些都不利于未来超快自旋电子学器件的正常工作^[73]。

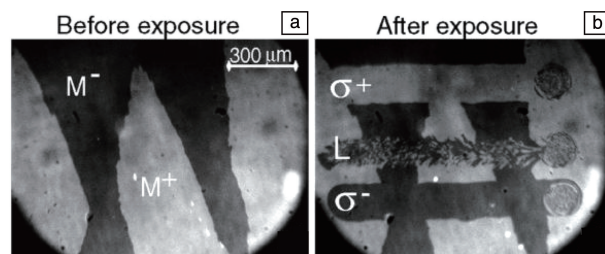


图 6 GdFeCo 合金材料在受到左旋和右旋偏振飞秒脉冲激光照射前后的磁矩状态^[26]

Fig. 6 Magnetic moments in GdFeCo alloy film before and after exposed in left- and right-handed polarized femtosecond laser pulse^[26]

近年来, 科学家们正在着力寻找单脉冲激光诱导产生全光学磁矩翻转的材料体系。2012 年, Rasing 教授团队率先在 GdFeCo 合金材料中实现了单脉冲全光学磁矩翻转^[37]。在单脉冲磁矩翻转效应中, GdFeCo 合金的磁矩每次受到飞秒脉冲激光的激发都会产生一次可控翻转, 与激光旋性无关。2017 年, Koopmans 教授团队在 Gd/Co 组成的多层膜结构中也实现了单脉冲磁矩翻转^[74]。2020 年 9 月, Banerjee 等^[75]报道了反铁磁耦合的 Mn_2RuGa 合金材料可以实现单脉冲全光学磁矩翻转。但是, 相较于激光旋性相关的多脉冲磁矩翻转方式, 到目前为止, 实现单脉冲全光学磁矩翻转的成熟材料只集中在 Gd 基稀土-过渡族合金或多层膜体系中。然而, 单脉冲全光学磁矩翻转效应才是真正有可能在高密度、高速度、低能耗自旋电子学器件等方面具有潜在应用价值的磁矩操纵手段。因此, 研究单脉冲激光诱导磁矩翻转的物理机制以实现单脉冲全光学磁矩翻转材料体系的设计, 已成为自旋电子学领域的前沿科学问题。

目前, 国内外科研人员针对此科学问题展开了一系列研究, 主要方法是基于唯象的电-声子双温度模型。荷兰奈梅亨大学 Radu 等^[36]采用电-声子双温度模型结合 LLG 方程, 模拟了 GdFeCo 合金材料的全光学磁矩翻转过程, 过渡族金属 FeCo 的磁矩在 300 fs 内快速减小, 而稀土金属 Gd 的磁矩退磁时间持续了 1.5 ps。正是由于稀土金属和过渡族金属两套亚格子磁矩对激光的响应时间不同, 才会出现一个瞬时铁磁态, 这个铁磁态中存在两套亚格子之间的自旋角动量转移, 最终导致磁矩发生翻转。经飞秒脉冲激光作用后, 电-声子双温度模型给出了电子

和声子的温度变化, 由于电子的比热容远小于声子的, 其在 1 ps 内温度迅速上升至 1500 K, 高于材料的居里温度, 使合金材料中的 Gd 和 FeCo 发生瞬态解耦合, 从而产生不同的磁矩弛豫时间。这一唯象模型的实质是将非平衡态动力学过程简化成一种热效应弛豫, 将电子、声子、自旋看作 3 个热力学库, 且三者之间存在耦合, 在外界提供能量的情况下三者温度发生变化, 从而导致磁矩发生变化。基于这一模型, 后续还开展了一些更为细致的研究工作。英国约克大学 Moreno 等^[76] 计算发现, GdFeCo 合金发生单脉冲磁矩翻转的前提条件之一是其磁矩补偿点要高于室温, 而磁矩补偿点与材料的组分和厚度密切相关。2017 年, 美国加州大学伯克利分校 Gorchon 等^[77] 报道了当激光脉宽为 15 ps, GdFeCo 合金依然可以实现全光学磁矩翻转, 此时电子的峰值温度低于材料的居里温度, 这一结果证明了材料晶格的热化驱动了磁矩翻转。2020 年, 荷兰奈梅亨大学 Davies 等^[78] 经过系统研究, 认为实现全光学磁矩翻转的激光脉宽和 GdFeCo 合金材料组分有着非常紧密的依赖关系。

到目前为止, 基于电-声子双温度模型的研究方法, 可以总结出发生单脉冲全光学磁矩翻转的两个前提条件: ① 材料需要包含两套亚格子, 且必须是反铁磁耦合; ② 两套亚格子的磁矩对激光的响应时间要有明显差别。尽管如此, 目前的主要问题存在于, 采用上述唯象的方法尚不能解释只有 Gd 基稀土-过渡族合金体系中实现了单脉冲全光学磁矩翻转, 而 TbCo、DyCo 等其他类似材料体系至今无法实现单脉冲全光学磁矩翻转。因此, 发展在超快时间尺度上的第一性原理计算方法, 直接研究激光作用后材料电子结构的磁动力学行为, 可能会对深入理解全光学磁矩翻转过程起到至关重要的推动作用^[79]。

6 结 语

飞秒激光脉冲泵浦磁性材料导致的超快退磁现象蕴含着丰富的物理内涵, 涉及到电子、声子和自旋在非平衡态下的量子多体相互作用等基本物理问题, 从而开辟了磁学研究的一个新方向——飞秒磁学。本文主要回顾了飞秒脉冲激光诱导超快自旋动力学的理论模型和实验研究进展, 以及全光学磁矩翻转效应。自从超快退磁现象在 1996 年被发现以来, 在过去的 20 多年里, 研究者们对飞秒脉冲激光诱导超快自旋动力学的研究主要集中在两个方面: 第一, 对超快退磁物理机制的研究; 第二, 对在亚皮秒时间尺度上操纵磁矩的实际应用的探索。对于机制研究而言, 由于超快时间尺度内发生的动力学行为主要涉及到电子、声子和自旋三者的高度非平衡态下的耦合过程, 这与静态下的机制可能完全不同, 造成了

对这一问题的研究还基本停留在唯象或者半经典方法中, 要想更准确、更深入地研究超快退磁微观机制, 还需发展更直接的描述方法, 或许可以解释一些现存理论和实验结果之间的矛盾。实际上, 研究者们更迫切地想充分利用并实现全光学方法来操纵磁矩, 该方法具有能耗低、速度快等优势。目前, 在磁光效应较强的 GdFeCo 合金等材料中观察到了比较明显的超快磁矩翻转现象, 后续还需要寻找更多的新材料, 同时具有高热稳定性、高自旋极化率、低功耗和高速存储等优点。与此同时, 研究特殊磁结构在飞秒脉冲激光作用下的超快响应过程, 也已经成为当前的研究趋势之一。斯格明子^[80] 作为一种新型的具有拓扑保护效应的磁结构, 可以降低操纵电流的密度, 因此受到了广泛关注。初步研究表明, 飞秒脉冲激光可以用来产生并操纵斯格明子, 为下一步研究斯格明子尤其是反铁磁斯格明子的超快动力学响应过程奠定了基础, 也为设计具有超低能耗、超快响应的新型自旋电子学器件指明了方向。

参考文献 References

- [1] KIRILYUK A, KIMEL A V, RASING T H. Review Modern Physics [J], 2010, 82(3): 2731–2784.
- [2] GRÜNBERG P, SCHREIBER R, PANG Y, *et al.* Physical Review Letters [J], 1986, 57(19): 2442–2445.
- [3] CUBUKCU M, BOULLE O, MIKUSZEIT N, *et al.* IEEE Transactions on Magnetics [J], 2018, 54(4): 9300204.
- [4] LI Z, ZHANG S. Physical Review B [J], 2003, 68(2): 024404.
- [5] ZHANG B Y, XU Y, ZHAO W S, *et al.* Physical Review B [J], 2019, 99(14): 144402.
- [6] ZHANG B Y, XU Y, ZHAO W S, *et al.* Physical Review Applied [J], 2019, 11(3): 034001.
- [7] 许涌, 张帆, 张晓强, 等. 物理学报 [J], 2020, 69(20): 2–14.
XU Y, ZHANG F, ZHANG X Q, *et al.* Acta Physica Sinica [J], 2020, 69(20): 2–14.
- [8] XU Y, DEB M, MALINOWSKI G, *et al.* Advanced Materials [J], 2017, 29(42): 1703474.
- [9] BEAUREPAIRE E, MERLE J C, DAUNOIS A, *et al.* Physical Review Letters [J], 1996, 76(22): 4250–4253.
- [10] LIU P, LIN X, XU Y, *et al.* Materials [J], 2018, 11(1): 47.
- [11] XU Y, HEHN M, ZHAO W S, *et al.* Physical Review B [J], 2019, 100(6): 064424.
- [12] HOHLFELD J, MATTHIAS E, KNORREN R, *et al.* Physical Review Letters [J], 1997, 78(25): 4861–4864.
- [13] GÜDDE J, CONRAD U, JÄHNKE V, *et al.* Physical Review B [J], 1999, 59(10): 6608–6611.
- [14] SCHOLL A, BAUMGARTEN L, JACQUEMIN R, *et al.* Physical Review Letters [J], 1997, 79(25): 5146–5149.
- [15] KOOPMANS B. Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Ma-

- terials[M]. Hoboken: John Wiley & Sons, Inc., 2007.
- [16] ATXITIA M U. Modeling of Ultrafast Laser-Induced Magnetization Dynamics within the Landau-Lifshitz-Bloch Approach[D]. Madrid: Autonomous University of Madrid, 2012.
- [17] ATXITIA U, CHUBYKALO-FESENKO O. Physical Review B[J], 2011, 84(14): 144414.
- [18] KUIPER K C. Exciting Spins: Revealing Nonlocal Effects in Ultrafast Magnetization Dynamics [D]. Eindhoven: Eindhoven University of Technology, 2016.
- [19] KUIPER K C, ROTH T, SCHELLEKENS A J, *et al.* Applied Physics Letters[J], 2014, 105(20): 202402.
- [20] SCHELLEKENS A J, KUIPER K C, DE WIT R R J C, *et al.* Nature Communications[J], 2014, 5: 4333.
- [21] ZHANG Q, NURMIKKO A V, MIAO G X, *et al.* Physical Review B [J], 2006, 74(6): 064414.
- [22] MÜLLER G, WALOWSKI J, DJORDJEVIC M, *et al.* Nature Materials [J], 2009, 8: 56–61.
- [23] KISE T, OGASAWARA T, ASHIDA M, *et al.* Physical Review Letters[J], 2000, 85(9): 1986–1989.
- [24] WANG J, SUN C, KONO J, *et al.* Physical Review Letters[J], 2005, 95(16): 167401.
- [25] KIMEL A V, KIRILYUK A, RASING T. Laser & Photonics Review [J], 2007, 1(3): 275–287.
- [26] STANCIU C D, HANSTEEN F, KIMEL A V, *et al.* Physical Review Letters[J], 2007, 99(4): 047601.
- [27] CARVA K. Nature Physics[J], 2014, 10(8): 552–553.
- [28] QIU Z Q, BADER S D. Review of Scientific Instruments[J], 2000, 71(3): 1243.
- [29] KOOPMANS B. High Speed Switching and Rotational Dynamics in Small Magnetic Thin Film Devices[M]// Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II, Edited by HILLEBRANDS B, OUNADJELA K. New York: Springer, 2003.
- [30] VAN KAMPEN M, JOZSA C, KOHLHEPP J T, *et al.* Physical Review Letters[J], 2002, 88(22): 227201.
- [31] VAN DER ZIEL J P, PERSHAN P S, MALMSTROM L D. Physical Review Letters[J], 1965, 15(5): 190–193.
- [32] DESCHAMPS J, FITAIRE M, LAGOUTTE M. Physical Review Letters[J], 1970, 25(19): 1330–1332.
- [33] HE W, ZHU T, ZHANG X Q, *et al.* Scientific Reports[J], 2013, 3: 2883.
- [34] EVANS R F L, OSTLER T A, CHANTRELL R W, *et al.* Applied Physics Letters[J], 2014, 104(8): 082410.
- [35] EVANS R F L, FAN W J, CHUREEMART P, *et al.* Journal of Physics Condensed Matter[J], 2014, 26(10): 103202.
- [36] RADU I, VAHAPLAR K, STAMM C, *et al.* Nature[J], 2011, 472: 205–208.
- [37] OSTLER T A, BARKER J, EVANS R F L, *et al.* Nature Communications[J], 2012, 3: 666.
- [38] MALINOWSKI G, LONGA F D, RIETJENS J H H, *et al.* Nature Physics[J], 2008, 4(11): 855–858.
- [39] KOOPMANS B, KICKEN H H J E, VAN KAMPEN M, *et al.* Journal of Magnetism and Magnetic Materials[J], 2005, 286: 271–275.
- [40] KOOPMANS B, MALINOWSKI G, DALLA LONGA F, *et al.* Nature Materials[J], 2010, 9: 259–265.
- [41] FÄHNLE M, ILLG C. Journal of Physics Condensed Matter[J], 2011, 23(49): 493201.
- [42] NOWAK U. Classical Spin Models[M]//Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials. Hoboken: John Wiley & Sons, Inc., 2007.
- [43] LONGA F D, KOHLHEPP J T, DE JONGE W J M, *et al.* Physical Review B[J], 2007, 75(22): 224431.
- [44] BATTIATO M, CARVA K, OPPENEER P M. Physical Review Letters [J], 2010, 105(2): 027203.
- [45] TURGUT E, LA-O-VORAKIAT C, SHAW J M, *et al.* Physical Review Letters[J], 2013, 110(19): 197201.
- [46] ESCHENLOHR A, BATTIATO M, MALDONADO P, *et al.* Nature Materials[J], 2013, 12: 332–336.
- [47] VODUNGO B, GAUTIER J, LAMBERT G, *et al.* Nature Communications[J], 2012, 3: 999.
- [48] SCHELLEKENS A J, VERHOEVEN W, VADER T N, *et al.* Applied Physics Letters[J], 2013, 102(25): 252408.
- [49] MUELLER B Y, HAAG M, FÄHNLE M. Journal of Magnetism and Magnetic Materials[J], 2016, 414: 14–18.
- [50] CARPENE E, MANCINI E, DALLERA C, *et al.* Physical Review B [J], 2008, 78(17): 174422.
- [51] HAAG M, ILLG C, FÄHNLE M. Physical Review B[J], 2014, 90(1): 014417.
- [52] ZHANG G P, HÜBNER W. Physical Review Letters[J], 2000, 85(14): 3025–3028.
- [53] ZHANG G P, SI M S, GEORGE T F. Journal of Applied Physics[J], 2015, 117(17): 17D706.
- [54] BIGOT J Y, VOMIR M, BEAUREPAIRE E. Nature Physics [J], 2009, 5: 515–520.
- [55] BERGEARD N, HEHN M, MANGIN S, *et al.* Physical Review Letters[J], 2016, 117(14): 147203.
- [56] KOOPMANS B, RUIGROK J J M, LONGA F D, *et al.* Physical Review Letters[J], 2005, 95(26): 267207.
- [57] WALOWSKI J, MULLER G, DJORDJEVIC M, *et al.* Physical Review Letters[J], 2008, 101(23): 237401.
- [58] REN Y F, ZUO Y L, SI M S, *et al.* IEEE Transactions on Magnetics [J], 2013, 49(7): 3159–3162.
- [59] ZHANG Z, WU D, LUAN Z Z, *et al.* IEEE Magnetics Letters[J], 2015, 6: 3500604.
- [60] ZHANG W, HE W, ZHANG X Q, *et al.* Physical Review B[J], 2017, 96(22): 220415.
- [61] GILMORE K, IDZERDA Y U, STILES M D. Physical Review Letters [J], 2007, 99(2): 027204.
- [62] ZHANG W, LIU Q, YUAN Z, *et al.* Physical Review B[J], 2019,

- 100(10): 104412.
- [63] CHENG R, XIAO J, NIU Q, *et al.* Physical Review Letters[J], 2014, 113(5): 057601.
- [64] LIU Q, YUAN H Y, XIA K, *et al.* Physical Review Materials[J], 2017, 1(6): 061401(R).
- [65] ZHANG W, JUNGFLAISCH M B, JIANG W J, *et al.* Physical Review Letters[J], 2014, 113(19): 196602.
- [66] GUILLEMARD C, ZHANG W, MALINOWSKI G, *et al.* Advanced Materials[J], 2020, 32: 1908357.
- [67] GUILLEMARD C, PETIT-WATELOT S, DEVOLDER T, *et al.* Journal of Applied Physics[J], 2020, 128(24): 241102.
- [68] RADU I, WOLTERS DORF G, KIESSLING M, *et al.* Physical Review Letters[J], 2009, 102(11): 117201.
- [69] ALEBRAND S, GOTTWALD M, HEHN M, *et al.* Applied Physics Letters[J], 2012, 101(16): 162408.
- [70] HASSDENTEUFEL A, HEBLER B, SCHUBERT C, *et al.* Advanced Materials[J], 2013, 25: 3122–3128.
- [71] MANGIN S, GOTTWALD M, LAMBERT C H, *et al.* Nature Materials[J], 2014, 13: 286–292.
- [72] LAMBERT C H, MANGIN S, VARAPRASAD B, *et al.* Science[J], 2014, 345(6202): 1337–1340.
- [73] KIMEL A V, LI M. Nature Reviews Materials[J], 2019, 4: 189–200.
- [74] LALIEU M L M, PEETERS M J G, HAENEN S R R, *et al.* Physical Review B[J], 2017, 96(22): 220411.
- [75] BANERJEE C, TEICHERT N, SIEWIERSKA K E, *et al.* Nature Communications[J], 2020, 11: 4444.
- [76] MORENO R, KHMELEVSKYI S, CHUBYKALO-FESENKO O. Physical Review B[J], 2019, 99(18): 184401.
- [77] GORCHON J, WILSON R B, YANG Y, *et al.* Physical Review B[J], 2016, 94(18): 184406.
- [78] DAVIES C S, JANSSEN T, MENTINK J H, *et al.* Physical Review Applied[J], 2020, 13(2): 024064.
- [79] EICH S, PLÖTZING M, ROLLINGER M, *et al.* Science Advances[J], 2017, 3(3): 1602094.
- [80] SHEN L C, XIA J, ZHAO G P, *et al.* Applied Physics Letters[J], 2019, 114(4): 042402.

(编辑 王 瑶)