



山西大学

2019届硕士学位论文

超快光学技术对磁性薄膜自旋动力学  
过程的实验研究

作者姓名 李艳旭

指导教师 张靖 教授

学科专业 光学

研究方向 固态自旋电子学

培养单位 量子光学与光量子器件国家重点实验室  
山西大学光电研究所

学习年限 2016年9月至2019年6月

二〇一九年六月



山西大学

2019 届硕士学位论文

# 超快光学技术对磁性薄膜自旋动力学 过程的实验研究

作者姓名	李艳旭
指导教师	张 靖 教授
学科专业	光 学
研究方向	固态自旋电子学
培养单位	量子光学与光量子器件国家重点实验室 山西大学光电研究所
学习年限	2016 年 9 月至 2019 年 6 月

二〇一九年六月

**Thesis for Master's degree, Shanxi University, 2019**

**Experimental investigation of spin dynamics in  
ferromagnetic film by ultrafast optical technique**

<b>Student Name</b>	Yan-xu Li
<b>Supervisor</b>	Prof. Jing Zhang
<b>Major</b>	Optics
<b>Specialty</b>	Solid State Spintronics
<b>Department</b>	State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Device Institute of Opto-Electronics
<b>Research Duration</b>	2016.09-2019.06

June, 2019

# 目 录

中文摘要.....	I
ABSTRACT.....	III
第一章 绪论.....	1
1.1 引言.....	1
1.2 论文结构安排.....	3
第二章 超快自旋动力学概述.....	5
2.1 引言.....	5
2.2 超快退磁.....	6
2.2.1 退磁.....	6
2.2.2 三温度模型.....	7
2.3 自旋进动.....	8
2.3.1 自旋进动.....	8
2.3.2 LLG 方程.....	10
第三章 实验系统搭建.....	13
3.1 引言.....	13
3.2 时间分辨磁光法拉第效应.....	13
3.2.1 磁光现象及理论.....	13
3.2.2 法拉第效应.....	17
3.2.3 克尔效应.....	18
3.2.4 时间分辨泵浦探测.....	20
3.3 系统设计与优化.....	21
3.3.1 测量系统的搭建.....	21
3.3.2 平衡光桥探测器.....	23
3.3.3 双重锁相放大测量.....	24
3.3.4 时空分辨的优化.....	25
第四章 CoFeB/MgO 铁磁薄膜的超快自旋动力学研究.....	29
4.1 引言.....	29
4.2 静态磁性.....	29
4.3 CoFeB/MgO 铁磁薄膜超快磁化动力学测量.....	30

4.3.1 实验方法.....	30
4.3.2 泵浦能量密度的影响.....	31
4.3.3 磁场强度及角度的影响.....	33
4.4 小结.....	36
第五章 二维材料 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 的超快自旋动力学研究.....	37
5.1 引言.....	37
5.2 静态磁性.....	37
5.3 层状 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 超快磁化动力学测量.....	38
第六章 总结.....	41
参考文献.....	43
攻读学位期间取得的研究成果.....	49
致谢.....	51
个人简况及联系方式.....	53
承诺书.....	55
学位论文使用权声明.....	57

# Contents

<b>Chinese Abstract</b> .....	I
<b>Abstract</b> .....	III
<b>Chapter 1 preface</b> .....	1
1.1 Introduction.....	1
1.2 Article's structure .....	3
<b>Chapter 2 Overview of ultrafast spintronics dynamics</b> .....	5
2.1 Introduction.....	5
2.2 Ultra-fast demagnetization.....	6
2.2.1 Demagnetization.....	6
2.2.2 Three temperature model.....	7
2.3 Spin Precession.....	8
2.3.1 Precession.....	8
2.3.2 LLG equation.....	10
<b>Chapter 3 Construction of Experimental System</b> .....	13
3.1 Introduction.....	13
3.2 Time-resolved magneto-optical Faraday effect.....	13
3.2.1 Magneto-optical phenomena and theory.....	13
3.2.2 Faraday effect.....	17
3.2.3 Kerr effect.....	18
3.2.4 Time-resolved pump detection.....	20
3.3 System Design and Optimization.....	21
3.3.1 Construction of the measurement system.....	21
3.3.2 Balanced Light Bridge Detector.....	23
3.3.3 Double phase lock amplification measurement.....	24
3.3.4 Optimization of space-time resolution.....	25
<b>Chapter 4 Ultrafast Spin Dynamics Study of CoFeB/MgO Thin Films</b> .....	29
4.1 Introduction.....	29
4.2 Static Magnetism .....	29
4.3 Ultra-fast magnetization kinetics measurement of CoFeB/MgO film.....	30

4.3.1 Experimental methods.....	30
4.3.2 Effects of pump energy density.....	31
4.3.3 Effects of magnetic field strength and angle.....	33
4.4 Conclusion of this chapter.....	36
<b>Chapter 5 Ultrafast Spin Dynamics Study of Cr<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>Te<sub>6</sub>.....</b>	<b>37</b>
5.1 Introduction.....	37
5.2 Static Magnetism .....	37
5.2 Ultrafast Spin Dynamics Study of Cr <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> Te <sub>6</sub> .....	38
<b>Chapter 6 Conclusion.....</b>	<b>41</b>
<b>Bibliography.....</b>	<b>43</b>
<b>Research achievements.....</b>	<b>49</b>
<b>Acknowledgment.....</b>	<b>51</b>
<b>Personal profiles.....</b>	<b>53</b>
<b>Letter of commitment.....</b>	<b>55</b>
<b>Authorization statement.....</b>	<b>57</b>

## 中文摘要

随着信息科学领域的飞速发展，自旋作为电子的内禀属性之一有望突破电荷在电子器件中受到的诸多限制。据此，以研究利用电子自旋作为信息载体，通过调控和操纵自旋，实现数据存储、逻辑运算、量子计算等各种应用功能的学科自旋电子学应运而生。研究过程中磁性材料作为自旋信息存储介质不断地被提出更高的性能要求。受到信息存储高速低耗的驱动，为了实现对磁矩运动的更快速的操控，研究磁性材料中磁矩在超快尺度上的运动规律，备受自旋电子学领域研究者的关注。

超快脉冲激光能够激发磁性材料迅速达到非平衡状态即发生超快退磁现象并产生和之后的磁化恢复和磁矩进动等现象。而我们目前对磁性材料超快时间尺度的自旋行为的物理内涵并不能系统深入的理解。因此，为了完成理论的研究和实现其作为存储材料的实际应用，我们开展了具体实验来研究超快脉冲激光激发磁性材料的自旋动力学过程。此外，二维范德华（Two-dimensional van der Waals, 2D vdW）磁性材料由于其中量子限制原子尺寸产生许多新奇的量子现象得以在实验上观察，因而广泛受到研究者的关注。在理解体系中电子的行为以及提高磁性材料应用价值的过程中，使用超快光学技术对体系的光学、磁学以及静电调控等各种相关物理特性的研究具有重要意义。

本论文的主要内容为：

(1) 基于泵浦-探测磁光技术建立了低温高灵敏度的时间分辨法拉第旋转（Time-resolved Faraday rotation, TRFR）探测系统。该平台通过飞秒脉冲激光实现了亚皮秒量级的时间分辨率，聚焦光斑可达到约为  $2\mu\text{m}$  的空间分辨率，以及可以任意改变样品表面与磁场的角度。还利用该平台在室温下对具有垂直各向异性的 CoFeB/MgO 铁磁薄膜进行了超快自旋动力学测量验证了系统的可靠性和时空分辨能力。

(2) 使用搭建的时间分辨双色泵浦-探测法拉第旋转探测平台，系统测量了 CoFeB/MgO 铁磁薄膜结构中激光激发的自旋动力学过程，观察到了超快退磁及自旋进动的信号，并研究了不同泵浦能量密度、外加磁场强度和角度对自旋进动行为和吉尔伯特阻尼的影响。实验结果磁化进动频率与进动反转寿命与基于朗道-利弗席兹-吉尔伯特（Landau-Lifshitz-Gilbert, LLG）方程的理论计算结果基本吻合。此外还对样品退磁信号的空间分布进行了扫描，观察到了磁畴的动力学变化。

(3) 此外还研究了薄层  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  作为特征 2D vdW 磁性材料的静态磁性及其超快自旋动力学过程。

关键词：时间分辨磁光法拉第效应；双色泵浦-探测；超快自旋动力学；CoFeB/MgO 薄膜；二维范德华磁性材料

**ABSTRACT**

With the rapid development of information science, spin is expected to break through the limitations of charge in electronic devices as one of the intrinsic properties of electrons. Therefore, spintronics, which studies various application functions such as data storage, logical operation and quantum computing through regulating and manipulating spin, came into being. Magnetic materials are constantly being proposed as higher performance requirements as spin information storage media during the research process. Driven by high-speed and low-cost information storage, in order to achieve faster control of magnetic moment motion, the study of the magnetic moment in magnetic materials on ultra-fast scales has attracted the attention of researchers in the field of spintronics.

Ultrafast pulsed laser can stimulate the phenomenon of ultrafast demagnetization and recovery of magnetization and precession of magnetic moment when the magnetic material rapidly reaches the non-equilibrium state. However, our current physical connotation of the spin behavior of magnetic materials cannot be systematically understood. Therefore, in order to complete the theoretical research and practical application as a storage material, we carried out specific experiments to study the spin dynamics process of ultrafast pulsed laser excited magnetic materials. In addition, two-dimensional van der Waals (2D vdW) magnetic materials have been observed experimentally due to the many quantum phenomena in which quantum-restricted atomic sizes are generated, and thus have attracted wide attention of researchers. In the process of understanding the behavior of electrons in the system and improving the application value of magnetic materials, the study of various related physical properties such as optics, magnetism and electrostatic regulation is of great significance. The main contents of this paper are:

- (1) Based on the pump-detection magneto-optical technique, a

low-temperature and high-sensitivity time-resolved Faraday rotation (TRFR) detection system was established. The platform achieves a sub-picosecond time resolution with a femtosecond pulsed laser. The focused spot can achieve a spatial resolution of approximately 2  $\mu\text{m}$  and the angle between the sample surface and the magnetic field can be arbitrarily changed. Ultrafast spin kinetics measurements of CoFeB/MgO ferromagnetic films with perpendicular anisotropy were also carried out at room temperature using the platform to verify the reliability and space-time resolution of the system.

(2) Using the time-resolved two-color pump-detecting Faraday rotation detection platform, the system measured the spin-dynamic process excited by laser in CoFeB/MgO ferromagnetic thin film structure, and observed the signal of ultra-fast demagnetization and spin precession. The effects of different pump energy densities, applied magnetic field strengths and angles on spin precession behavior and Gilbert damping are investigated. The experimental results show that the magnetization precession frequency is in agreement with the theoretical calculation based on the Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation. In addition, the spatial distribution of the sample demagnetization signal was scanned, and the dynamics of the magnetic domain were observed.

(3) The static magnetic properties and ultra-fast dynamics of 2D vdW magnetic materials were studied. The Gilbert precession in the ultrafast kinetics process was measured, and the LLG equation and its derivative formula were used to fit it well and the damping constant of the material was obtained.

**Keywords:** Time-resolved Faraday effect; Two colour pump-probe; Ultrafast spin dynamics; Two-dimensional van der Waals magnets; CoFeB/MgO films

# 第一章 绪论

## 1.1 引言

磁存储作为重要的信息存储方式，伴随着科学技术的发展，其存储密度和信息读写速度极限得以不断突破。在磁存储器件中，通常使用每个磁性单元的磁化状态（磁化方向的向上或向下）来代表数据以二进制（对应“0”和“1”）的方式来实现信息在磁性介质上的存储和获取。磁存储器件的数据存储密度正由这些磁性存储单元的大小决定。早在20世纪50年代，IBM 公司研发了首个具有  $2 \text{ kb/in}^2$  存储密度和约为5 Mb 存储容量的硬盘，这是现在广泛使用的机械硬盘的雏形[1]。经过40 多年科学发展，存储技术有了巨大的进步，存储单元的尺寸变得越来越小，存储密度已经突破  $100 \text{ Gb/in}^2$ 。同时，信息存储的速度也在不断加快，磁盘驱动器的数据传输速率已经可以达到约  $200 \text{ Mb/s}$ ，磁化翻转的时间也就是单个存储单元的写入时间缩短至1ns 以下[2][3]。随着社会的进步，科技的发展，研究者们仍然试图突破该纳秒级别的存储速度极限以期满足更多信息存储的需求。

基于科学研究应用于产业技术，信息存储器件的发展对信息提出大量存储和快速处理两个基本需求，而不断减小基本微电子器件的尺寸和不断提高对它们进行读写控制操作的速度成为了磁性器件技术进步的两个基本方向。

从减小微电子器件尺寸的角度来看，1975 年研究者提出著名的摩尔定律（Moore's Law）充分描述了在以硅材料工艺为基础集成电路日新月异的发展速度[4]。经过几十年的科技发展，如今单个 CPU 芯片上的晶体管数已经超过近亿个（如图1.1所示）。随着微电子器件尺寸缩小至纳米尺度，摩尔定律已经面临失效的危机。一方面是因为基本元器件单元尺寸减小引起的量子效应导致漏电流，另一方面是因为在超高集成度的器件上产生了难以避免的热功耗。与电荷元器件类似，磁性存储器件上基本存储单元的尺寸也遵循类似摩尔定律[5]，实现存储单元尺寸的不断减小变得越来越困难[7]。

而从另一个方向基本电子器件读写速度的提高上来看，器件的读写方式和技术也在不断进步。对于磁存储介质，一般通过外加脉冲磁场的方式来实现存储单元中磁矩的方向的操控。通过脉冲磁场的作用，磁性材料内部往往会出现以磁畴为单位的翻转运动，这一过程至少需要几十 ns 乃至近 ms 量级的时间，包含了磁晶的成核和畴壁的运动，净磁矩平行于外加磁场的微小磁畴逐步形成并扩张导致磁矩的

整体翻转完成[8]。相比于目前高速集成电路中GHz 量级的时钟频率，以磁畴为单位的翻转运动速度显然无法满足需求。相较于磁畴的形成和运动，磁化矢量的转动过程时间数量级明显更小。改变外加磁场方向时，磁性材料体系内的自旋磁矩会处于非平衡态，并且通过重新排列达到与外加磁场方向平行的新平衡态，这一过程是通过磁矩绕外磁场方向进动的方式完成的，时间尺度大约在百 ps至百  $\mu$ s 量级 [7][8][9]。

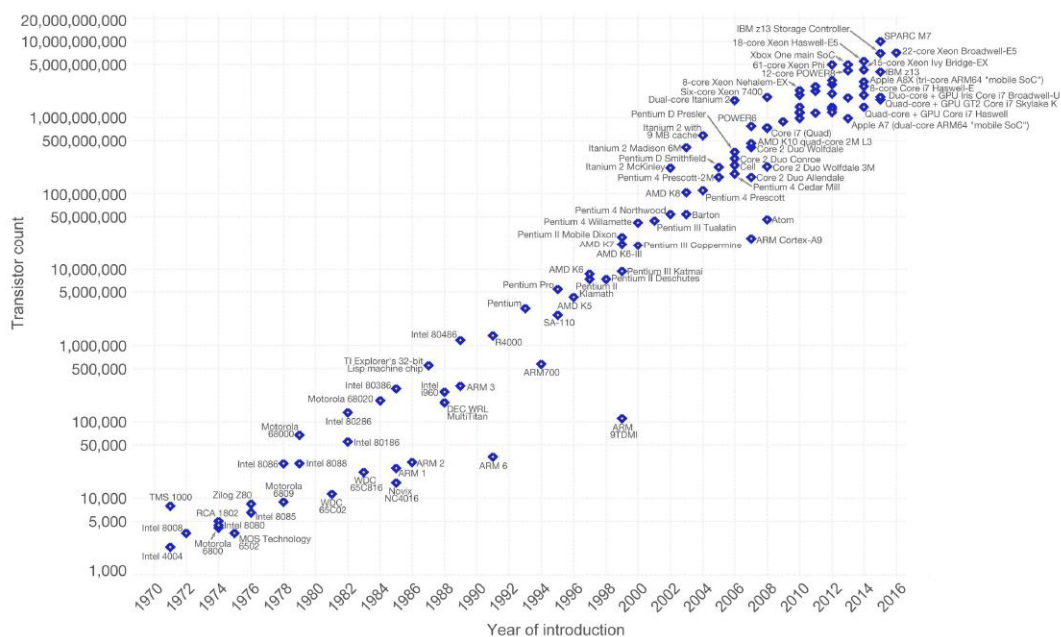


图1.1 电荷器件中单个芯片上晶体管个数反映的摩尔定律发展历史[5]

快速操纵磁矩的翻转对存储信息应用具有巨大的价值和潜力，相关的微电子器件磁随机存储器（Magnetic Random Access Memory, MRAM）迅速吸引了众多研究者的注意并得到了迅速发展[10]。因为MRAM有更高的存储密度和更快速存储数据的能力以及低功耗的优势，这使得 MRAM 在理论上具有不限使用寿命的潜力。一个典型的 MRAM单元结构如图 1.2所示，基于磁隧道结（magnetic tunnel junction, MTJ）的MRAM位单元分布在相互垂直的双层导线栅格上。上层的导线叫位线（Bit line），下层的导线叫字线(Word line)。MTJ器件位于两层导线之间的相交点上。信息的定位和数据的读写通过改变位线字线各自电流的通断来控制实现。自由层和参考层均为铁磁薄膜层，被一个势垒层分开，当两铁磁层的磁矩改变相对取向时，隧道结的电阻被改变，由此定义了二进制存储器的状态[11]。该结构具有很高的集成度。并且由于不需要与硅结构接触，因此该阵列也可以堆叠，从而进一步提高集成度与MRAM密度。

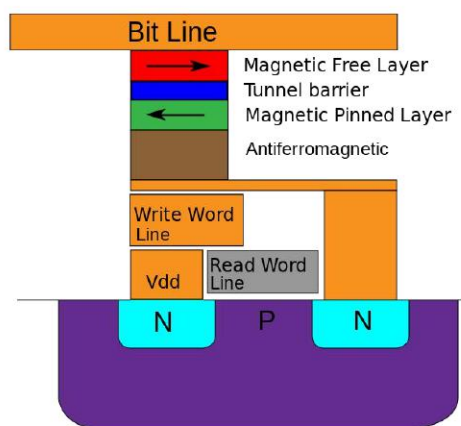


图1.2 MRAM单元的简化结构

对于传统磁存储器件，外磁场作为实现磁化翻转的助力使翻转的时间尺度在 ns 量级。随着外磁场的强度增大，磁化翻转的时间可由之前的 ns 量级缩减至 ps 量级。事实上，通过提高外加脉冲磁场的强度和缩短外加磁场的作用时间的手段并不能突破磁矩翻转速度的时间尺度极限[12]。显而易见，磁存储技术在实际应用中正在快速接近它的速度极限。

此时超快激光就成为了磁存储技术发展过程中突破的契机。随着超快飞秒激光的应用，超快时间尺度上的磁动力学研究大力推动了磁存储发展。在这些研究中，超快光学已经成功替代了磁场脉冲运用在磁化的操控中，而飞秒激光操控亚皮秒量级的磁化翻转使得磁存储领域开启了新纪元[13]。

## 1.2 论文结构安排

本论文的主要研究工作以CoFeB/MgO磁性薄膜和二维范德华材料为载体，对其自旋动力学过程进行了详细的实验研究和理论分析。通过时间分辨的法拉第旋转技术测量了磁性薄膜自旋动力学过程。

在本论文的第一、二章对磁存储和自旋电子学及自旋电子器件的发展情况简单介绍并对涉及到的超快光学技术、超快时间尺度的自旋动力学内容做了一定的介绍。

第三章主要介绍了实验相关的磁光效应原理并详细阐述了基于时间分辨泵浦-探测技术搭建的实验测量系统。

第四章、第五章是对实验数据处理以及结果分析。实验上测量了激光能量，外磁场强度和角度对磁性薄膜超快动力学过程的影响。并得出LLG方程理论与实验测量规律互相吻合。

最后一章是本论文工作总结和展望。



## 第二章 超快自旋动力学概述

### 2.1 引言

磁动力学过程对应着较宽的时间范围，其中不同的物理过程对应的特征时间尺度不同[13]，图 1.2 描述了不同磁动力学过程的特征时间尺度。该时间尺度 ( $\tau$ ) 由相互作用能量  $E$  通过海森堡方程  $\tau = \hbar/E$  来决定。

其中，时间范围在 ps 量级之下的一般为超快磁化动力学过程。最快的过程是交换作用，发生在 10 fs 内，自旋轨道耦合 (Spin-orbit coupling) 和自旋转移矩发生在 10 fs 到 1 ps 的时间尺度内，其中包含百 fs 量级的激光激发超快退磁过程。

紧接着发生的是磁矩恢复过程，时间范围在 1 ~ 10 ps 之内。与阻尼相关的磁进动过程发生在之后的 ps 到 ns 的时间尺度上，而自旋波可以在磁性材料中传播百 ps 到几十 ns。

最慢的过程有关于磁畴，包括单畴的翻转和畴壁运动。对于磁性薄膜的单畴翻转，主要过程是磁畴中的磁化矢量受外场作用进行转动并逐渐联结扩张形成整个畴的旋转。这个瞬态过程发生在几 ns 到几百  $\mu$ s 的时间范围内。而磁畴移动则是一个宏观的效应，它强烈地依赖于磁性薄膜的结构和磁畴的大小等因素，这个时间范围可以从百  $\mu$ s 延伸至 ms 量级[14]。

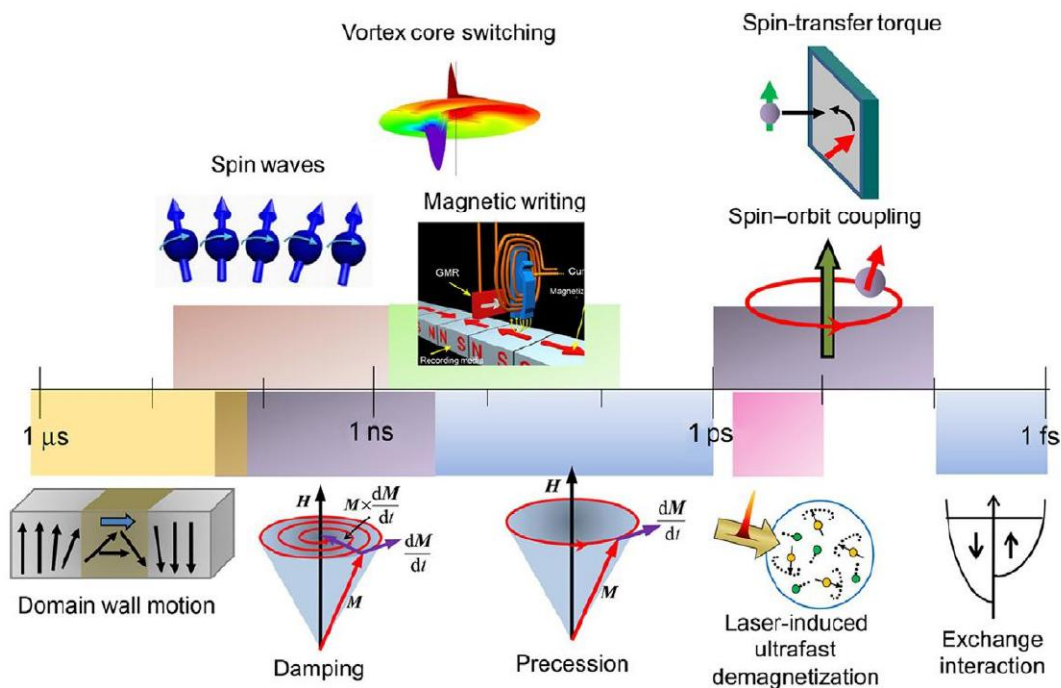


图2.1 不同磁动力学过程的特征时间尺度[14]

正如之前所述，利用脉冲磁场控制磁性材料的磁矩翻转纵然增大外磁场的强度，磁化翻转的时间能够被提高到 ps 量级，显然还不能达到技术上期待的信息存储速度。相对于自旋极化电流、磁振子、磁电耦合材料以及微波共振等各种手段，使用超快激光时间分辨光谱技术显然更能实现对磁性材料自旋的快速调控。而飞秒超快脉冲激光器的研究和发展极大程度上促进了光学技术对磁性材料自旋的调控。

## 2.2 超快退磁

### 2.2.1 退磁

自1996年 E. Beaurepaire 等人使用飞秒脉冲激光激发铁磁性金属镍 (Ni) 发生亚皮秒时间尺度上的超快退磁现象[15]以来，如何利用飞秒脉冲激光实现自旋磁矩的超快调控以及超短激光脉冲与磁有序的铁磁材料的相互作用就已经成为一个受到广大研究者们关注的问题。

实际上，M. B. Agranat 等人[16]早在1984年就利用泵浦-探测原理开展了磁性材料在超快脉冲激光诱导下的退磁现象研究。因为他们在激发 50 - 100 nm厚的铁磁性金属Ni 薄膜时使用的探测光束为连续光，成功观察到退磁现象时泵浦光脉宽为 40ns，由此推断铁磁性Ni 薄膜中自旋-晶格以及自旋-电子的弛豫时间大约在40ns以下。A. Vaterlaus 等人在之后十几年里[17][18]开展了真正意义上使用到双脉冲激光的泵浦-探测实验。他们测量到金属材料 Fe 和稀土族元素 Gd 薄膜自旋弛豫时间在数十 ps 量级，并且由此推断材料中的自旋弛豫是能量由自旋系统与晶格系统之间的转移实现的。

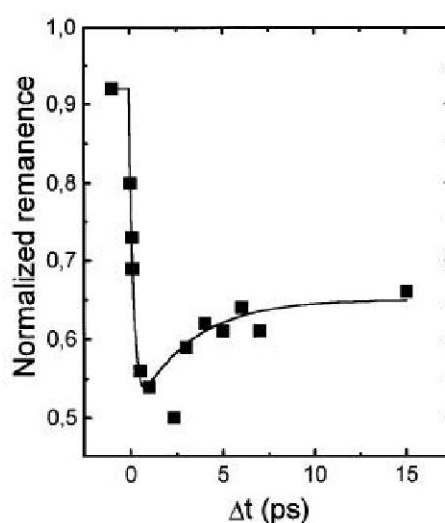


图 2.2 Ni (20nm) / MgF<sub>2</sub> (100nm) 膜在 7mJ/cm<sup>2</sup> 泵浦通量下的瞬态剩余纵向 MOKE 信号。信号归一化为在没有泵浦光束的情况下测量的信号。图中实线是视觉引导[15]。

直到 1996 年, E. Beaurepaire 等人[15]改变了之前对退磁时间和自旋弛豫时间的认识, 极大地推进了自旋动力学的发展, 他们使用脉宽 60fs 的泵浦光激发 22nm 厚的铁磁性金属 Ni 薄膜的超快退磁响应, 时间分辨测量结果表明退磁时间仅为 260fs (图 2.2), 并通过提出三温度理论(之后将详细描述), 用电子、自旋和晶格体系温度及其相互作用来解释该磁化动力学过程。这一结果引起了研究者的极大关注, 并得到随后开展的实验验证[19][20][21][22]。

### 2.2.2 三温度模型

1996年, E. Beaurepaire 等人试图通过建立以电子、自旋、晶格作为储能系统, 将它们之间通过能量转移相互联系形成温度平衡系统的“三温度模型”来解释超快退磁现象。图 2.3 即为“三温度模型”的示意图。

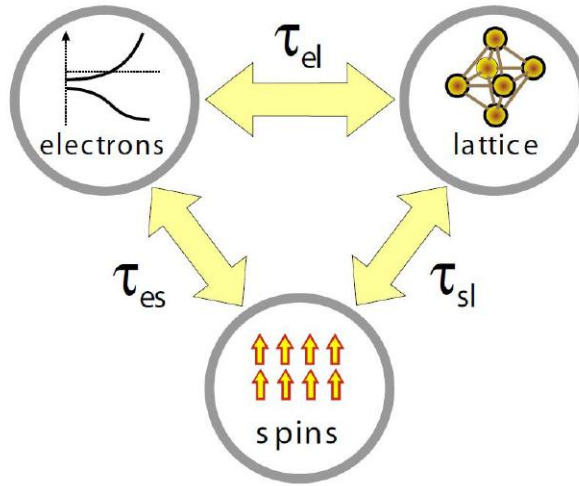


图2.3 三温度模型示意图[15]

模型中的“三温度”, 分别描述的是电子温度  $T_e$ , 晶格温度  $T_l$  和自旋温度  $T_s$ 。模型中将这三个温度体系之间的能量传递随时间的变化关系表示为:

$$\begin{aligned}
 C_e \frac{dT_e}{t} &= -G_{el}(T_e - T_l) - G_{es}(T_e - T_s) + P(t) \\
 C_s \frac{dT_s}{t} &= -G_{es}(T_s - T_e) - G_{sl}(T_s - T_l) \\
 C_l \frac{dT_l}{t} &= -G_{el}(T_l - T_e) - G_{sl}(T_l - T_s)
 \end{aligned} \tag{2.1}$$

其中,  $C_e$ 、 $C_s$ 、 $C_l$  分别表示电子、自旋和晶格系统的比热,  $G_{el}$ 、 $G_{es}$ 、 $G_{sl}$  分别为电子-晶格、电子-自旋、自旋-晶格之间的耦合系数,  $P(t)$  表示外加光场对电子系统的

能量输入。图 2.4 所示为超快激光作用后电子、自旋和晶格温度随时间的演化关系 [15]。

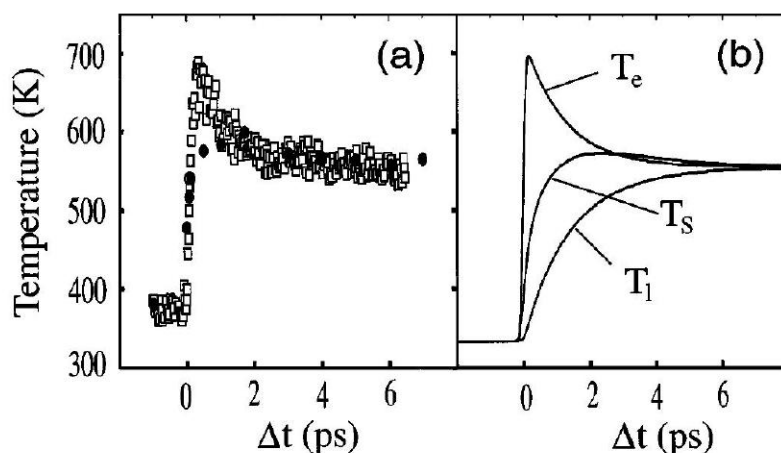


图 2.4 根据三温度模型得到随时间的演化的电子温度  $T_e$ ，晶格温度  $T_l$  和自旋温度  $T_s$ 。

对三个温度体系随时间的演化解为几个阶段：

(1) 超快脉冲激光的激发使电子对光产生瞬时响应迅速吸收光子跃迁到高能级形成电子-空穴对，比热  $C_e$  较低的电子温度  $T_e$  迅速升高。这个能量由光子转移到电子的过程通常在 1fs 的时间尺度内就已经结束。而强烈的电子-自旋相互作用使能量实现在电子体系中的弛豫致使自旋温度  $T_s$  上升显著快于晶格温度  $T_l$  的上升， $T_s$  的上升直接引起材料饱和磁矩下降，形成快速的退磁。

(2) 电子-晶格弛豫和自旋-晶格弛豫将电子和自旋体系的能量传递给晶格系统。三个体系的温度在数 ps 后逐渐达到稳定平衡，共同进入一个百 ps 到 ns 时间尺度的稳定过程。

(3) 最后能量由高温晶格向衬底产生热扩散。

## 2.3 自旋进动

### 2.3.1 自旋进动

飞秒脉冲激光对磁性材料的作用除了激发超快退磁还可以激发的超快自旋进动现象。通过对超快自旋进动现象的测量可以得到材料的各种重要磁学参数，诸如吉尔伯特阻尼因子、朗德  $g$  因子、饱和磁矩以及磁各向异性等。

早在1999年，Ganping Ju 等人[23]首次对磁性材料中由超快脉冲激光诱导的自旋一致进动效应进行了实验测量[24]。他们测量 Ni Fe/Ni O 薄膜体系中时间分辨磁光克尔效应反映了磁矩的进动现象，并且研究了超快飞秒脉冲激光对交换偏置场的影响[25]。

通常认为当材料饱和磁矩的方向与总有效磁场方向之间存在一个夹角时，磁矩一致进动随之产生。在20世纪初期，Qiang Zhang 等人[26][27]就在对  $\text{CrO}_2$  体系的研究中报道了这种进动的激发机制。因激光脉冲的热效应能够明显改变  $\text{CrO}_2$  材料中受环境温度影响较大的磁晶各向异性场，使得总有效场的方向改变由此激发磁矩进动过程（图 2.5）。

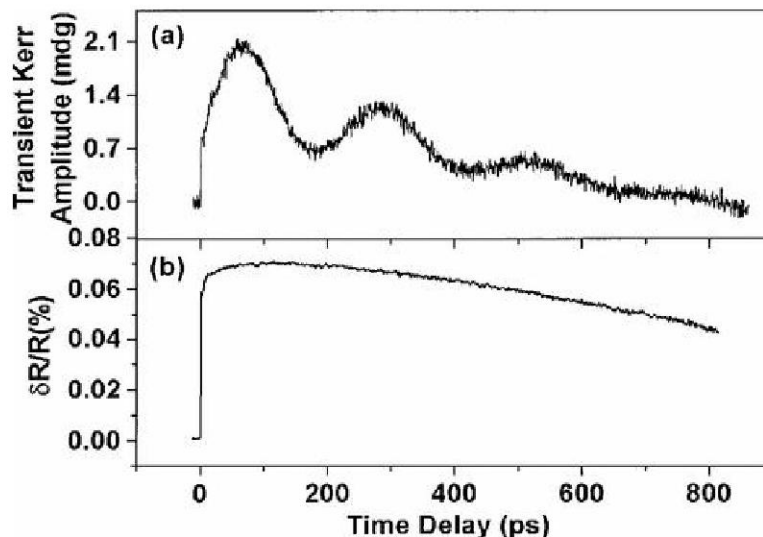


图2.5  $\text{CrO}_2$ 薄膜的(a)瞬态克尔旋转角 (b)瞬态反射率曲线的超快时间演化[26]

超快激光激发磁矩绕非平衡总有效磁场进动，这一微观现象反映在宏观尺度上的光学测量中的效果即体现为磁光效应时间分辨测量结果中信号的衰减振荡现象。

我们可以引入总的总有效磁场  $H_{\text{eff}}$  的概念，表示为

$$H_{\text{eff}} = H_{\text{ext}} + H_a + H_d + H_e + H_{\text{dip}} + \dots \quad (2.2)$$

其中  $H_{\text{eff}}$  包括外加磁场  $H_{\text{ext}}$ 、磁性材料本身的磁晶各向异性场  $H_a$ 、材料形状各向异性造成的退磁场  $H_d$ 、交换相互作用场  $H_e$ 、以及自旋不均匀排布造成的磁偶极场  $H_{\text{dip}}$  等。

磁性材料在未经激发时，饱和磁矩的方向平行于总有效磁场  $H_{\text{eff}}$  的方向，此时将总有效磁场  $H_{\text{eff}}$  方向的方位角标记为  $\theta_c$ ，如图2.6 (a) 中初始所示。

当飞秒脉冲激光作用于磁性材料时，会导致饱和磁矩  $M$  如图2.6 (a) 迅速减小至  $M'$ ，约为 ps 时间尺度。同时，脉冲光的激发使有效磁场分量中各向异性场  $H_a$  改变直接导致  $H_{\text{eff}}$  的方向也发生改变，总有效磁场  $H_{\text{eff}}$  的方向偏离原来的平衡位置产生新的暂态有效磁场  $H'_{\text{eff}}$ ，且方向记为  $\theta'_c$ ，因此饱和磁矩的方向与总有效磁场方向产生夹角。

如图2.6中所示的状态b阶段，磁矩  $M'$  与暂态有效场  $H'_{\text{eff}}$  方向产生夹角进而会发

生拉莫尔进动，此阶段称为“相干旋转进动”，时间尺度约 10ps。

由于激光脉冲持续时间很短，有效场向初始方向恢复（图2.6c）；虽然有效场已快速恢复，但磁矩随之恢复的过程受到内禀的自旋晶格的弛豫时间的制约将围绕 $H_{\text{eff}}$ 方向做持续的阻尼进动，对应于时间分辨磁光信号测量结果中开始产生逐渐衰减的周期性振荡信号。对此分析可得到样品的阻尼系数。

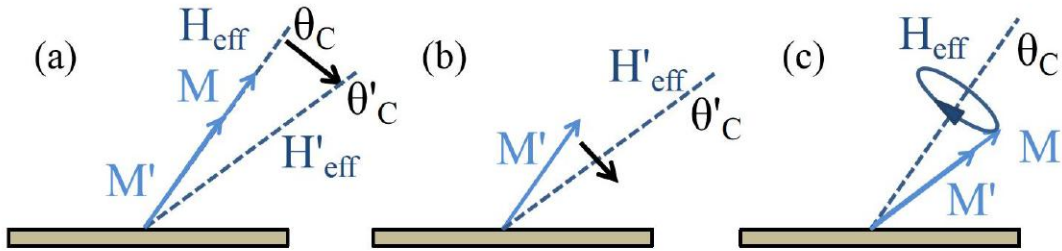


图2.6 不同阶段磁矩运动状态示意图

### 2.3.2 LLG 方程

将一个不均匀磁化的样品分割为许多很小的区域。在这些极小的区域中，磁化强度可以视作是均匀的。对于这样的单个区域，磁矩运动可以用经典方法处理。假设磁矩进动过程中没有阻尼项（图2.7a），角动量和磁矩的关系是：

$$L = m / \gamma \quad (2.3)$$

其中 $\gamma$ 是旋磁比。在外场 $H$ 中，磁矩的转矩  $T$  为

$$T = m \times H \quad (2.4)$$

角动量随时间的改变相当于转矩，即

$$\frac{dL}{dt} = \frac{d}{dt} \frac{m}{\gamma} = T = m \times H \quad (2.5)$$

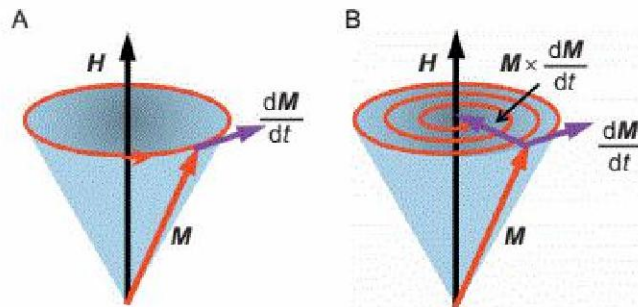


图2.7 磁化矢量 ( $M$ ) 在 (a) 没有阻尼项的情况下和 (b) 在存在阻尼项的情况下围绕磁场 ( $H$ ) 的进动

实际上，与自旋作用的有效磁场  $H_{\text{eff}}$ 有众多分量，情况因此变得更加复杂。此

时，磁矢量的运动可以写成下面的形式，即一方程。

$$\frac{dm}{dt} = \gamma[m \times H_{\text{eff}}] = \gamma T \quad (2.6)$$

此方程即是描述了磁矩绕有效场 $H_{\text{eff}}$ 的进动。 $H_{\text{eff}}$ 的表达式如式(2.2)除了外场 $H_{\text{ext}}$ ，其它项都是由样品本身决定的。引入一个称之为额外转矩的衰减项 $T_D$ 作用在进动的 $m$ 上使磁矩转向平衡态描述材料中的耗散现象，使磁矩的方向渐渐平行于有效场的方向 $H_{\text{eff}}$ 。

$$T_D = C \left[ m \times \frac{dm}{dt} \right] \quad (2.7)$$

其中 $C$ 纯粹唯象比例常数，类似直线运动摩擦系数。这样，式子就变成LLG方程，式中 $\alpha$ 是唯象的吉尔伯特阻尼因子。

$$(1 + \alpha^2) \frac{\partial m}{\partial t} = \gamma [m \times H_{\text{eff}}] + \frac{\alpha \gamma}{|m|} [m \times (m \times H_{\text{eff}})] \quad (2.8)$$

当 $\alpha$ 很小的时候，二次方项忽略不计LLG方程写为下式与上式等价[28]

$$\frac{\partial m}{\partial t} = \gamma [m \times H_{\text{eff}}] + \frac{\alpha}{|m|} \left[ m \times \frac{\partial m}{\partial t} \right] \quad (2.9)$$

方程(2.9)被用来研究样品分割的小区域中的磁化动态过程。因为若分割区域的空间尺寸无限小，则区域中磁化反转过程中磁矩保持一致。

而当样品尺寸较大时，磁矩将变成一个空间函数，总有效场 $H_{\text{eff}}$ 收到相互作用的影响，此时LLG方程则无法有效模拟超快磁动力学过程。



## 第三章 实验系统搭建

### 3.1 引言

超快光学技术随着飞秒激光器的发展成为探测材料内部信息不可或缺的实验光学测量手段。本文中基于超快光学技术对CoFeB/MgO磁性薄膜为载体进行光学探测，可以获得垂直磁各向异性磁性薄膜的超快自旋动力学过程并由此得到材料的特征阻尼因子各向异性场等体系的其它性质。

本文对磁性薄膜材料中的自旋动力学研究，主要涉及到了超快时间分辨的法拉第旋转(time resolved Faraday rotation, TRFR)技术和磁光克尔效应技术(MOKE)。TRFR以泵浦-探测技术为基础，主要对光的热激发磁性材料产生的非平衡态的自旋信息进行探测。通过用泵浦光热效应引发超快退磁，利用线偏振光探测在偏振方向上体系的自旋动力学过程。此外，通过对磁性材料的磁光效应扫描测量，我们可以获得磁性材料的磁滞回线直接反映了矫顽力饱和场等体系内部信息。下面我们将分别介绍本论文中所涉及的实验测量技术。

### 3.2 时间分辨磁光法拉第效应

#### 3.2.1 磁光现象及理论

光与物质的相互作用受到介质磁性态的影响，并涉及到物质的电子结构。电磁辐射与磁极化材料之间的这种相互作用产生磁光效应。这些效应在电磁学的早期历史中发挥了重要作用，为光的电磁理论以及包括电子自旋运动和自旋轨道耦合在内的经典和量子物质理论提供了实验支持。

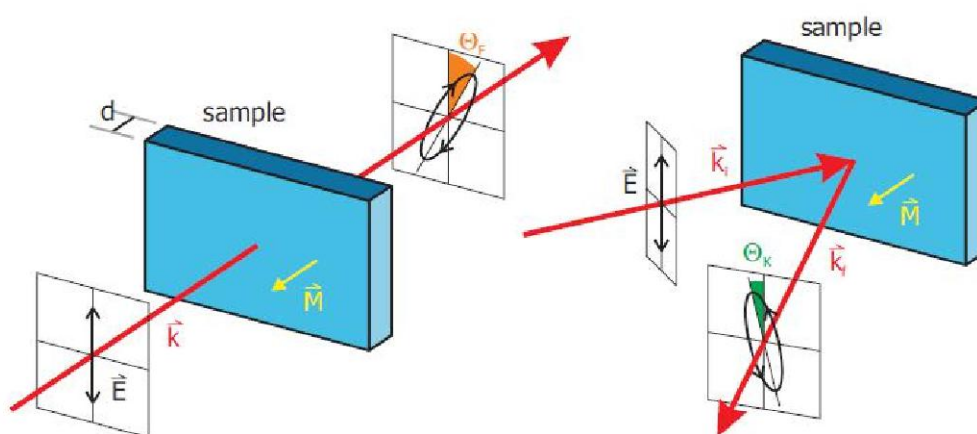


图 3.1 法拉第效应的几何示意图（左）和磁光克尔效应（右）。对于这两种效应，样品的磁化引起偏振面的旋转和略微的椭圆度。

1845 年, Michael Faraday 发现线性偏振光在具有特定磁场的介质中传播时, 其偏振方向是旋转的, 旋转角与磁场大小和光在介质中传播的距离有关[30]。这就是法拉第效应, 它首次表明了磁场和光之间的密切关系。之后 1877 年, John Kerr 也观察到线性偏振光的偏振面在从一块抛光电磁铁磁极的表面反射时的旋转即为克尔效应[31]。这些效应来源于光与磁场和磁性材料之间的相互作用。之后法拉第效应及克尔效应被证明是一种探测磁性质非常有效而且灵敏的技术, 被广泛应用于材料的磁化检测。

线性偏振光是沿着给定方向振荡, 垂直于传播方向具有电场矢量  $E$  的波, 可以证明, 任何线性极化波都可以看作是两个圆极化分量的叠加, 即左旋圆偏振 (LCP) 和右旋圆偏振 (RCP), 振幅  $E_L = E_R = E / 2$ 。另一方面, 椭圆偏振光可以看作是两个线性偏振分量的叠加, 这两个分量是异相的并且具有不同的幅度 (如果两个分量的电场相等, 则所得到的光是圆偏振的)。假设线性偏振光穿过由自由电子和固定正中心形成的介质, 满足电荷中性的局部条件。线性极化波可以看作是上述两个圆偏振分量 LCP 和 RCP 的叠加。

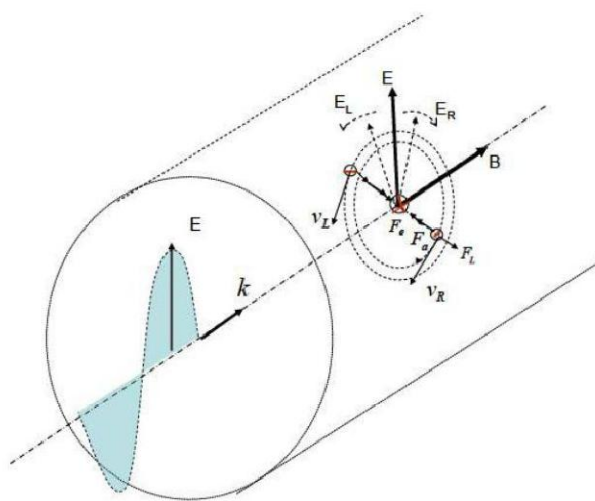


图 3.2 磁光效应的图示。

显然, LCP 电场将驱动电子围绕固定正中心的左旋圆周运动, 而 RCP 电场将驱动电子进入右旋圆周运动。圆形轨迹的半径是通过作用在电子上的力的平衡建立的, 假设对电子正中心形成一个具有吸引力的恢复力的旋转电偶极子  $F_a$ , 正比于圆形轨道的半径  $r$  ( $F_a = -kr$ )。在没有施加任何磁场的情况下, 左右圆周运动中两个电子轨道的半径相等, 如公式所示:

$$eE_{L,R} + kr_{L,R} = m\omega^2 r_{L,R} \Rightarrow r_{L,R} = \frac{eE/2m}{\omega^2 - \omega_0^2} \quad (3.1)$$

其中,  $\omega$  是辐射的角频率,  $m$  接近电子质量, 并且  $\omega_0^2 = k/m$ , 是材料相关常数 ( $\omega > \omega_0$ )。E 是波的电场的幅度,  $e$  是基本电荷。由于电偶极矩  $P_i$  与圆形轨道的半径 ( $P_i = eR$ ) 成正比, 由  $P = NP_i$  ( $N$  = 每单位体积的偶极数), 因此从  $\mathbf{D} = \epsilon\mathbf{E} = \epsilon_0\mathbf{E} + \mathbf{P}$  直接得到, 介电常数  $\epsilon$  可表示为:

$$\epsilon = \epsilon_0 \left( 1 + \frac{Ne^2/2m\epsilon_0}{\omega^2 - \omega_0^2} \right) \quad (3.2)$$

考虑到  $n^2 = \epsilon r = \epsilon/\epsilon_0$  ( $\mu_r = 1$ ), 介电常数与左右圆极化电磁分量所见的相应折射率之间没有差别。

如果沿着波的传播方向施加磁场, 情况则发生变化, 额外的洛伦兹力将分别对具有左右旋转运动的电子起作用 (图 3.2)。因此, 根据下方程式, 两个圆形轨道的半径变得不同:

$$eE_{L,R} + kr_{L,R} \pm e\omega r_{L,R} B = m\omega^2 r_{L,R} \Rightarrow r_{L,R} = \frac{eE/2m}{(\omega^2 - \omega_0^2 \mp \omega B e/m)} \quad (3.3)$$

因此, 由左旋圆偏振波和右旋圆偏振波看到的介电常数和相应的折射率  $n_L$  和  $n_R$  是不同的, 导致不同的传播速度。最后, 在光通过介质行进距离  $L$  之后, 两个圆偏振波显示相位差  $\Delta\theta = (\omega L/c)/(n_L - n_R)$ 。在从介质出射处对两个圆偏振分量求和, 得到线偏振波, 其偏振方向从初始方向以角度  $\theta = \Delta\theta/2$  旋转。两个折射率  $n_L$  和  $n_R$  可以表示为:

$$n_{L,R}^2 = 1 + \frac{Ne^2/2m\epsilon_0}{\omega^2 - \omega_0^2 \mp \omega B e/m} \cong n^2(1 + \xi) \quad (3.4)$$

$$n^2 = 1 + \frac{Ne^2/2m\epsilon_0}{\omega^2 - \omega_0^2} \quad (3.5)$$

$$\xi = \left( \frac{\omega B}{m} \right) \left( \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2} \right) \quad (3.6)$$

$$n_{L,R} \cong n \left( 1 \pm \frac{1}{2} \right) \xi \quad (3.7)$$

$$\theta = \frac{\omega L}{2c} (n_L - n_R) \cong \frac{\omega L n \xi}{2c} \cong \frac{ne}{2mc} \frac{\omega^2}{\omega^2 - \omega_0^2} LB \cong K(\omega) LB \quad (3.8)$$

通过简单的现象学解释获得的上述关系恢复了法拉第效应的本质，该观察代表了磁光学（MO）的诞生。根据关系式（3.8），旋转角度 $\theta$ 与施加的场的强度 $B$ 成比例，并且沿光的路径的长度 $L$ 传播通过介质，比例常数取决于光波长（比例常数被称为维尔德 Verdet 常数）。

然而，已经在 19 世纪末，人们观察到这种线性依赖性不适用于铁磁材料，铁磁材料通常也具有非常大的 MO 效应。早期尝试估计提供接近铁磁材料中观察到的旋转角度的有效场的大小可能导致值为  $10^2 \sim 10^3$  T。因此，在铁磁材料的情况下，关系式（3.8）中的场  $B$  必须由总场替换， $B = B_0 * (1 + \chi)$ ，其中  $B_0 = \mu_0 H$ ，是真空中磁感应强度， $\chi$  是磁化率（ $\chi = \mu_0 M / B_0$ ， $M$  为磁化）。在铁磁材料的情况下， $\chi \gg 1$ ，得到  $B = B_0 * \chi = \mu_0 M$ ，因此，关系式（3.8）表明在这种情况下，旋转角度与  $L$  和介质的磁化强度  $M$  成比例。

更详细地观察表示线性偏振光作为两个圆偏振分量的叠加的现象学模型，实际上有两个过程发生在光通过磁化介质传播：(i) 两个偏振分量以不同的速度传播从具有不同相移的介质中出现，导致法拉第旋转 (ii) 两个分量可以呈现不同的吸收系数，导致出现的电场， $E_L$  和  $E_R$  的不同幅度，对于给定的椭圆偏外向光。因此，折射率  $n_{L,R}$  必须是复杂的参数，并且可以通过扩展等式（3.7）来表示，对于复折射率的情况， $n^* = n + i\kappa$  并考虑到扰动，通过磁场的折射率  $\xi$  不仅仅取决于  $B$  的大小，而且还取决于其相对于传播方向的取向， $\mathbf{u}_k = \mathbf{k} / k$  ( $\mathbf{k}$  是真空中波矢量， $\mathbf{u}_k$  是其反射率)。在一般情况下， $\xi$  可以写为乘积  $\mathbf{Q} \cdot \mathbf{u}_k$ ，其中  $\mathbf{Q}$  称为 Voight 矢量并且与场感应  $B$ （或磁化  $M$ ）成比例。值得一提的是，在沿着  $\mathbf{u}_k$  的  $B$  的情况下， $\xi = Q$  并且根据关系式（6）与  $B$  成比例，而关系式（3.7）扩展到[6]。

$$n_{L,R} \cong n(1 \pm \frac{1}{2} \mathbf{Q} \cdot \mathbf{u}_k) \quad (3.9)$$

$n$  为复数折射率，由通常折射率给出的实部和吸收系数给出的虚部组成。因此，获得复杂的法拉第旋转，并且关系式（3.8）延伸到

$$\theta = \frac{\pi L n}{\lambda} \mathbf{Q} \cdot \mathbf{u}_k = \theta_k + i\varepsilon_k \quad (3.10)$$

其中  $\theta_k$  是旋转角度，并且  $\varepsilon_k$  是出射偏振光的椭圆率。从方程式（3.10）可以看出足以知道矢量  $\mathbf{Q}$  和  $\mathbf{u}_k$ （或它们的分量），以及在没有施加场的情况下介质的折射率和吸收系数，以便估计  $\theta_k$  和  $\varepsilon_k$ 。

## 3.2.2 法拉第效应

法拉第表明，线性偏振光在透过具有沿传播方向施加的磁场的介质时将经历偏振面的旋转，如图 2 所示。因此，纵向磁场导致介质变得光学活跃。在其最简单的形式中，旋转 $\phi$ ，如公式 11 所示。如图 3.1 (a) 所示，与磁场强度  $\mathbf{B}$  和样品长度  $l$  成正比

$$\phi = V \int_0^l B dl = V l B \quad (3.11)$$

$V$  被称为维尔德常数，它取决于介质的特性，环境温度和入射光的波长 $\lambda$ 。

旋转角度 $\phi$ 取决于所施加的磁场的方向，并且按照惯例，当其感测与产生磁场的正电流的方向相同时， $V$  为正。

在没有源的情况下，麦克斯韦方程对于介质中的电磁波由（以 CGS 单位表示）给出

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0 \quad (3.12)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (3.13)$$

$$\nabla \times \vec{H}' = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (3.14)$$

$$\nabla \times \vec{E}' = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (3.15)$$

其中  $\mathbf{D}$  是电位移， $\mathbf{B}$  是磁感应， $\mathbf{H}'$  是宏观磁场， $\mathbf{E}'$  是电场，其中包括初始以区别于外部电磁场的应用。电位移和磁感应与电磁波引起的感应电磁矩  $\mathbf{m}$  和  $\boldsymbol{\mu}$  有关，通过以下关系

$$\vec{D} = \vec{E}' + 4\pi \sum_a N_a \vec{m}^a \quad (3.16)$$

$$\vec{B} = \vec{H}' + 4\pi \sum_a N_a \vec{\mu}^a \quad (3.17)$$

$N_a$  是状态  $a$  中每单位体积的分子数。首先，复合诱导力矩矢量的分量 ( $\delta; \varepsilon; \xi = x, y, z$ ) 是

$$m_\delta = \alpha_{\delta\varepsilon} E'_\varepsilon + \beta_{\delta\varepsilon} H'_\varepsilon \quad (3.18)$$

$$\mu_\delta = \gamma_{\delta\varepsilon} E'_\varepsilon + \chi_{\delta\varepsilon} H'_\varepsilon \quad (3.19)$$

其中 $\alpha$ 和 $\chi$ 分别是电磁极化和磁极化张量，并且是静态外部磁场 $\vec{H}$ 的复函数。因此，极化率张量可以写为

$$\alpha_{\delta\varepsilon} = \alpha_{\delta\varepsilon}^{(0)} + \alpha_{\delta\varepsilon\xi}^{(1)} H_{\xi} + \dots \quad (3.20)$$

$$\chi_{\delta\varepsilon} = \chi_{\delta\varepsilon}^{(0)} + \chi_{\delta\varepsilon\xi}^{(1)} H_{\xi} + \dots \quad (3.21)$$

因此，感应磁矩的表达式变为

$$\vec{m} = \alpha_{(0)} \vec{E}' + \beta_{(0)} \vec{H}' + \alpha_{(1)} (\vec{E}' \times \vec{H}') + \beta_{(1)} (\vec{H}' \times \vec{H}') \quad (3.22)$$

$$\vec{\mu} = \gamma_{(0)} \vec{E}' + \chi_{(0)} \vec{H}' + \gamma_{(1)} (\vec{E}' \times \vec{H}') + \chi_{(1)} (\vec{H}' \times \vec{H}') \quad (3.23)$$

求解复折射率 $\tilde{n}_{\pm}$ 的麦克斯韦方程组

$$\tilde{n}_{\pm} = 1 + 2\pi \sum_a N_a \left\{ \alpha_{(0)}^a + \chi_{(0)}^a \mp i\beta_{(0)}^a \pm i\gamma_{(0)}^a + [\pm i\alpha_{(1)}^a + i\chi_{(1)}^a + \beta_{(1)}^a - \gamma_{(1)}^a] H_{\pm} \right\} \quad (3.24)$$

复数旋光度由 $\tilde{\Phi} = \phi - i\theta = \omega(\tilde{n}_{-} - \tilde{n}_{+}) / 2c$ 给出，其中 $\omega$ 是介质上入射光的频率。这里， $\phi = \omega(\tilde{n}_{-} - \tilde{n}_{+}) / 2c$ 是法拉第旋转， $\theta = \omega(\tilde{k}_{-} - \tilde{k}_{+}) / 2c$ 是椭圆度，名义上称为磁圆二向性。因此，根据给出的表达式， $\tilde{n}_{\pm}, \tilde{\Phi}$ 可以用以下方式写出

$$\tilde{\Phi} = -\frac{2i\pi\omega}{c} \sum_a N_a \left\{ -\beta_{(0)}^a + \gamma_{(0)}^a + [\alpha_{(1)}^a + \chi_{(1)}^a] H_{\pm} \right\} \quad (3.25)$$

术语 $\alpha_{(1)}^a$ 和 $\chi_{(1)}^a$ 分别与入射光的电场和磁场 $E'$ 和 $H'$ 成比例，并且当施加外部磁场时负责磁光学活动。一般来说，关系 $\alpha(0) \gg \beta(0), \gamma(0), \chi(0), \alpha(1) \text{ Hz}$ ；并且 $\alpha(1) \gg \beta(1), \gamma(1), \lambda(1)$ 成立。这些关系允许式(3.24)近似为

$$\tilde{n}_{\pm} = 1 + 2\pi \sum_a N_a \alpha_{(0)}^a \quad (3.26)$$

恢复众所周知的复折射率，其中 $\alpha_{(0)}^a$ 的实部和虚部分别对应于折射 $n$ 和吸收率 $k$ 系数。此外，由式(3.25)可知，自然旋光性为：

$$\frac{2i\pi\omega}{c} \sum_a N_a \left\{ \beta_{(0)}^a - \gamma_{(0)}^a \right\} \quad (3.27)$$

因此，当 $\beta_{(0)}^a$ 和 $\gamma_{(0)}^a$ 非零时，会出现光学活动，分别导致实部和虚部的圆二色性和旋光性[13]。

### 3.2.3 克尔效应

克尔效应，当线性极化电磁波在电场或磁场作用下的金属表面上反射时出现。反射波的偏振变为椭圆形，并且偏振的旋转与磁化 $M$ 和介质的厚度成比例。它的微观起源（塞曼效应）是基于自旋-轨道相互作用和相对论效应。根据 $M$ 的方向（图

3.3)，MOKE 有三种几何结构：极性，纵向，横向。我们必须知道，观察到的效果通常是三种 MOKE 模式的叠加。

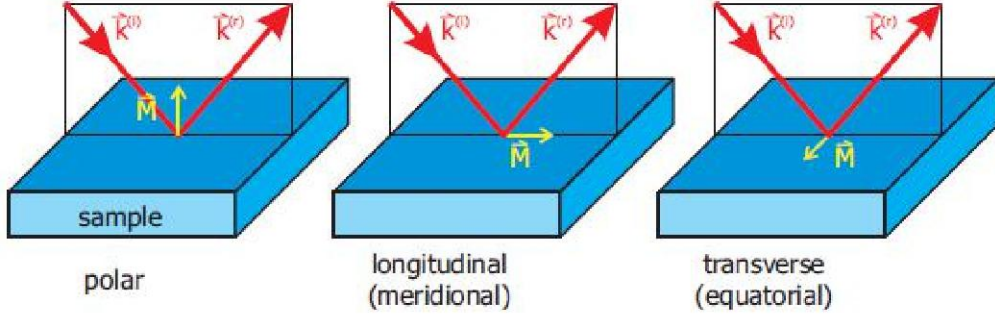


图 3.3 基本克尔几何。左：当磁化垂直于样品表面时，它被称为极性。中：对于纵向克尔效应，也称为子午线，磁化沿着表面并且也在入射平面中。右：垂直于入射平面的磁化限定了横向克尔效应，也称为赤道。任意方向  $M$  的克尔效应是三个基本效应的叠加。

考虑到可见光范围内的线性偏振单色波，脉冲  $\omega$  和波数  $k$  在空气中传播并垂直入射到铁磁材料上，其电场为  $E(t, z) \propto e^{-i(\omega t - kz)}$ 。我们介绍了电位移  $\mathbf{D}$  和与磁场  $\mathbf{H}$  相连的磁感应  $\mathbf{B}$ 。

$$\forall i, j \in \{1, 2, 3\}, \mathbf{D} = \boldsymbol{\varepsilon} \mathbf{E} = \varepsilon_0 \boldsymbol{\varepsilon}_r \mathbf{E} \Leftrightarrow D_i = \varepsilon_{ij}(\omega) E_j \quad (3.28)$$

$$\mathbf{B} = \boldsymbol{\mu} \mathbf{H} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}) \Leftrightarrow B_i = \mu_{ij}(\omega) H_j \quad (3.29)$$

其中， $\boldsymbol{\varepsilon}$ ， $\boldsymbol{\varepsilon}_r$  和  $\boldsymbol{\mu}$  分别是张量力介电常数，相对介电常数和磁导率。光频段下的磁导率接近于磁性和非磁性介质的真空磁导率  $\mu_0$  (Landau 假设)。因此，我们假设  $\mu_{ij} = \mu_0 \delta_{ij}$ ，其中  $\delta$  是 Krönecker 符号。假设介质是电中性的，麦克斯韦方程由下给出：

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (3.30)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial_t \mathbf{B} \quad (3.31)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j} + \partial_t \mathbf{D} \quad (3.32)$$

电流密度  $\mathbf{j}$  考虑了电导率张量， $\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{j} = \boldsymbol{\sigma} \mathbf{E}$ 。通过  $\varepsilon' = \varepsilon + i \frac{\boldsymbol{\sigma}}{\omega}$  定义有效介电常数，式

(3.32) 衍生出来

$$\frac{1}{\mu_0} \nabla \times \partial_t \mathbf{B} = \partial_t \mathbf{j} + \partial_t^2 \mathbf{D} \Leftrightarrow -\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \omega^2 \mu_0 (i \frac{\boldsymbol{\sigma}}{\omega} + \boldsymbol{\varepsilon}) \mathbf{E} \Leftrightarrow k^2 \mathbf{E} - (\mathbf{k} \cdot \mathbf{E}) \mathbf{k} = \frac{\omega^2}{c^2} \boldsymbol{\varepsilon}' \mathbf{E} \quad (3.33)$$

最后一个等式可以用复数指数重新表示：

$$n_i = \frac{c}{\omega} k_i \quad (3.34)$$

$$(n^2 \delta_{ij} - n_i n_j - \varepsilon'_{ij}) E_i = 0 \quad (3.35)$$

非零解决方案由前因子的行列式的零点给出，并导致用于计算正常传播模式的菲涅耳公式。

值得注意的是，非对角线项的重要性，它们是  $\mathbf{M}$  的函数，是磁光效应的原因。电介质张量必须通过磁化反转遵守 Onsager 的倒数关系： $\varepsilon'_{ij}(M) = \varepsilon'_{ji}(-M)$ 。在  $z$  轴与  $\mathbf{M}$  共线的极向情况下，介电常数张量为：

$$\varepsilon' = \begin{pmatrix} \varepsilon'_{xx} & \varepsilon'_{xy} & 0 \\ -\varepsilon'_{xy} & \varepsilon'_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon'_{zz} \end{pmatrix}, \varepsilon'_{xy} \in i \mathbb{R} \quad (3.36)$$

菲涅耳方程在  $n^2$  中变为二阶方程，并且产生零  $n_{\pm}^2 = \varepsilon'_{xx} \pm i\varepsilon'_{xy}$ （假设  $n_x = 0$  且  $n_y = 0$ ）。通过替换等式 (3.35) 中的这些特征值来找到本征模式。然后，可以证明  $E_x = \pm iE_y = e^{\pm i\frac{\pi}{2}} E_y$ 。这意味着存在两个具有圆偏振（左手和右手）的波，其以索引  $n_+$  和  $n_-$  传播。归纳是：

$$D_+ = n_+^2 (E_x + iE_y), D_- = n_-^2 (E_x - iE_y) \quad (3.37)$$

反射后光线为椭圆形。利用入射场  $\mathbf{E}_i$  和界面上的边界条件计算反射场  $\mathbf{E}_r$  的  $s$  和  $p$  的菲涅耳系数表示光的电场与入射平面正交或平行时的偏振。

$$\begin{pmatrix} E_{r,p} \\ E_{r,s} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{i,p} \\ E_{i,s} \end{pmatrix} \quad (3.38)$$

克尔旋转角  $\theta_{\text{ker}}$  和螺旋度  $\eta_{\text{ker}}$  用  $s$  光和  $p$  光表示：

$$\theta_{\text{ker},s} = \text{Re} \left( \frac{r_{ss}}{r_{sp}} \right), \eta_{\text{ker},s} = \text{Im} \left( \frac{r_{ss}}{r_{sp}} \right) \quad (3.39)$$

$$\theta_{\text{ker},p} = \text{Re} \left( \frac{r_{ps}}{r_{pp}} \right), \eta_{\text{ker},p} = \text{Im} \left( \frac{r_{ps}}{r_{pp}} \right) \quad (3.40)$$

### 3.2.4 时间分辨泵浦探测

泵浦-探测技术是超快脉冲激光在时间分辨光谱的测量上最经典的应用之一[7]。其基本原理是：使用一束能量较强的脉冲激光作为泵浦光照射到样品上，激发样品

至非平衡态。另一束与泵浦光同步能量较弱的光作为探测光通过延迟线 (Delay line) 与泵浦光聚焦至材料的同一点上或临近有关联的区域, 两束光的相对延迟时间为  $\Delta t$ , 探测光的反射或透射部分携带了材料的自旋信息被送入光电探测器采集, 获得我们需要的材料自旋随时间演化反映在光学上的种种参数信息。图 3.4 是一个典型时间分辨泵浦-探测实验光路图。

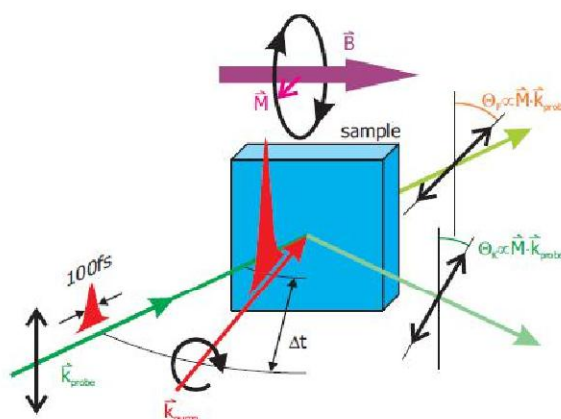


图 3.4 时间分辨泵浦 - 探测示意。在泵浦脉冲激发之后的时间  $t$  频闪地进行通过探测脉测量。通过施加垂直于激发的磁场 (Voigt 几何), 自旋系统执行进动。然后测量由法拉第和克尔效应引起的探测光偏振平面的旋转。

### 3.3 系统设计与优化

#### 3.3.1 测量系统的搭建

基于双色泵浦探测的微区变温 TRFR 技术的光学系统如图 1。

系统中所用的飞秒激光光源为由美国光谱物理公司生产的钛蓝宝石激光器 (Spectra Physics, Tsunami), 产生中心波长 770nm, 脉冲宽度 150fs, 重复频率 78MHz 的激光脉冲。激光脉冲一部分作为泵浦光并使用高功率光束致使样品退磁。而另一部分激光则通过光子晶体光纤 (Newport, SCG-800-CARS) 生成连续光谱并过滤波片选择出中心波长 820nm 的光脉冲来探测样品。

系统使用探测光路中的高精度线性平台来改变两束光的相对光程差以此完成时间分辨, 该线性平台长度为 1.2m, 通过折叠光路允许相对延迟时间  $\Delta t$  在 8ns 的时间范围内改变。线性平台的轨道移动方向与光束入射反射方向平行, 这样线性平台移动过程中出射光束的空间位置稳定, 不会影响后续光路中光束在各光学器件上的位置以及最终入射到样品时的位置。

经 50:50 分束器后共线的泵浦和探测光经一对位于低温腔内  $f=7.5\text{mm}$ ,  $\text{NA}=0.4$

的消色差透镜组聚焦在样品表面并透射还原为准直光束。旋转泵浦光路中的扫描阵镜结合 4f 透镜组可帮助改变泵浦光与探测光的相对位置，实现两束光在样品上的相对空间位置扫描（空间扫描模式 1）。

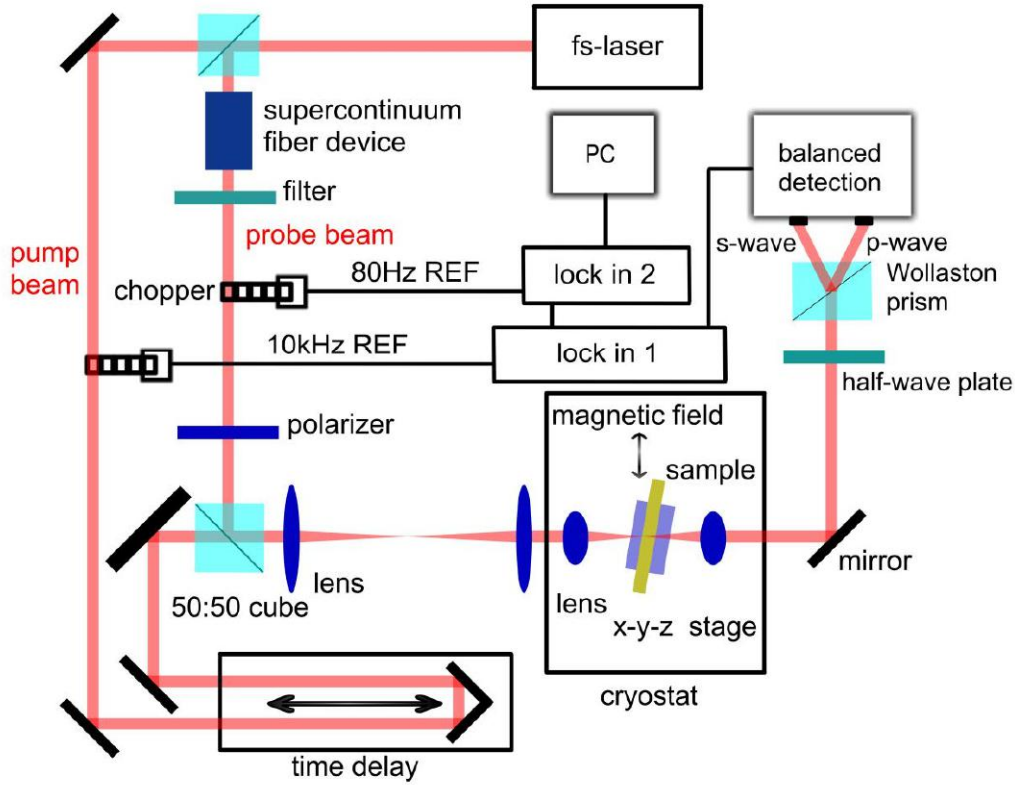


图 3.5 自旋动力学过程光学测量装置示意图

样品固定在真空恒温室内可任意旋转角度的样品托上。施加磁场方向固定如图 3.5 所示，磁场范围  $-650\text{mT}\sim 650\text{mT}$ 。通过旋转样品托角度可实现固定方向磁场下样品与外磁场的夹角变化。样品托位于三维纳米平移台上，通过对三位平移台的程序控制可实现对样品区域微米精度的逐点扫描测量（空间扫描模式 2）。恒温室温度范围可由 4K 到 350K 连续调节。

经样品透射的探测光中互相垂直的 s 波和 p 波分量经沃拉斯顿棱镜后空间分离，并通过高通滤波片以滤除剩余的泵浦光成分后由透镜聚焦分别进入平衡光桥探测器的两个光电二极管中。

光路中，泵浦光和探测光分别经由斩波器进行 10kHz 和 80Hz 的强度调制，旋转沃拉斯顿棱镜前的  $\lambda/2$  波片可以使得两个光电管中的直流分量相当，这样基于双重锁相调制技术和高增益低噪声探测技术，将能获得高信噪比的法拉第信号

$\theta_F(t) \propto S(t)$ ，该信号直接反映了样品在激光入射方向的磁矩变化。

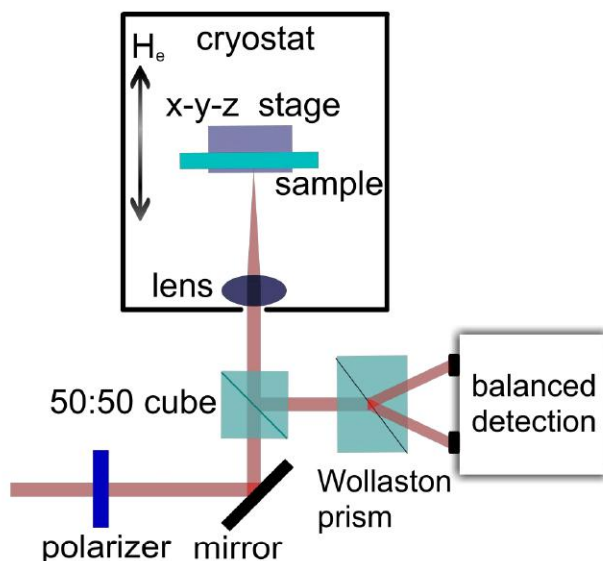


图 3.6 基于磁光克尔效应的静态磁性（面外方向）光学测量装置示意图

基于磁光克尔效应的微区静态磁性光学系统如图 3.6 所示。探测光束经过由  $\lambda/2$  波片和高消光比格兰-泰勒棱镜构成的起偏器后，由透镜聚焦在低温腔中的样品表面，反射光束进入与动力学测量中同样的光电探测器中。通过扫描固定方向的磁场范围可以得到样品的磁滞回线。

### 3.3.2 平衡光桥探测器

探测装置如图 3.5/3.6 所示，经样品后探测光的透射/反射部分被沃拉斯顿棱镜分成两个偏振方向相互垂直的分量，分别进入平衡电桥探测器的两个光电二极管中。旋转沃拉斯顿棱镜前放置的  $\lambda/2$  波片的光轴可以实现两光束分量强度的平衡即二极管电桥平衡。探测器电路中光电流信号经高阻抗放大器转换成电压信号  $U_A$  和  $U_B$ ，正比于两光电管处的光强  $I_A$  和  $I_B$ 。对两个电压信号分别做减法运算，对应的差信号为  $U_{\text{diff}}=U_A-U_B$ ，即电桥平衡时  $U_{\text{diff}}=0$ 。当样品诱导探测光透射/反射部分的偏振面发生偏转时， $\lambda/2$  波片保持不变， $U_{\text{diff}} \neq 0$ 。相对于入射线偏振探测光，透射光左旋分量和右旋分量  $\sigma^+$  和  $\sigma^-$  分量有相同的阻尼和相移  $e^{-\beta+i\phi}$ ，二者的相对相移为  $2\theta_{FK}$ ，幅度比为  $\frac{\eta-1}{\eta+1}$ ，则  $E_x$  和  $E_y$  可以表示成：

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \sqrt{2}E_1 \left[ \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + \frac{\eta-1}{\eta+1} e^{-i2\theta_{FK}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \right] \quad (3.41)$$

这里  $E_1 = e^{-\beta+i\phi}E_0/2$ 。透射/反射探测光经过  $\lambda/2$  波片，上方方程演变成：

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \sqrt{2}E_1R\left(\frac{\lambda}{2}\right)\left[\begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + \frac{\eta-1}{\eta+1}e^{-i2\theta_{F/K}}\begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}\right] = E_1(1+i)\begin{pmatrix} \frac{1-\eta}{1+\eta}e^{-i2\theta_{F/K}} + i \\ 1-i\frac{1-\eta}{1+\eta}e^{-i2\theta_{F/K}} \end{pmatrix} \quad (3.42)$$

探测光的透射/反射部分经过沃拉斯顿棱镜以后输出的两束偏振互相垂直的分量，因体系的自旋而导致其中一个光电二极管光强减小，另一个光强增大。光电管上的光强度具体为：

$$I_x = Z_0E_x^*E_x = 4Z_0|E_1|^2\frac{1+\eta^2+(1-\eta^2)\sin(2\theta_{F/K})}{(1+\eta)^2} \quad (3.43)$$

$$I_y = Z_0E_y^*E_y = 4Z_0|E_1|^2\frac{1+\eta^2-(1-\eta^2)\sin(2\theta_{F/K})}{(1+\eta)^2} \quad (3.44)$$

相应的差信号、和信号表达成：

$$I_{diff} = I_x - I_y = 8Z_0|E_1|^2\frac{1-\eta}{1+\eta}\sin(2\theta_{F/K}) \quad (3.45)$$

$$I_{sum} = I_x + I_y = 8Z_0|E_1|^2\frac{1-\eta}{(1+\eta)^2} \quad (3.46)$$

其中， $Z_0 = \sqrt{\mu_0/\varepsilon_0} = 376.7\Omega$ 是真空中均匀介质对平面单色波的特性阻抗，由于法拉第/克尔旋转角 $\theta_{F/K} \approx 0.5 \text{ mdeg} \ll 1$ ，有近似关系 $\sin(2\theta_{F/K}) \approx 2\theta_{F/K}$ ，由上方程可知，光电流强度 $I_{diff}$ 直接反映了体系的自旋信息。

### 3.3.3 双重锁相放大测量

磁性材料在脉冲激光的激发下发生磁矩转动，直接导致光学探测时的磁光法拉第/克尔效应。但该动力学过程中大小仅在数毫弧度数量级的自旋信号很容易湮没在电子噪声中，所以系统实验中我们为获得磁光法拉第/克尔旋转角的信息借助了锁相放大技术的帮助替代了直接测量反射光强的变化。

锁相放大技术是一种广泛应用于存在高背景噪声的有效的微弱交变信号检测手段。其原理是借助相敏检波单元利用和被测信号具有相同频率和锁相关系的参考信号作为比较基准，只对被测信号本身和那些与参考信号同频（或倍频），同相的噪声分量有响应，从而实现从频域上大幅度抑制背景噪声提高检测灵敏度和信噪比的功能。

实验系统中采用锁相放大测量的具体实现方法是借助斩波器（Optical Chopper）

对两束光进行一定的光学强度调制。通过光路中斩波器扇叶的旋转实现光束有无的周期性的变化,最终反映在探测器探测到的交流矩形波信号中被锁相放大器所采集。其频率由扇叶的转速及通孔的空间周期决定。

系统中,泵浦光脉冲通过斩波器的强度调制频率为 10kHz,被送入一级锁相放大器,作为一级参考信号频率。而探测光脉冲通过斩波器调制光强的调制频率为 80 Hz,作为二级锁相放大器的参考信号频率。

光路中的杂散的泵浦光进入到探测器中会直接影响探测精度,这些杂散光包括泵浦光在样品表面的透射/反射部分和光路中其他光学元件对泵浦光发生的微弱的反射和散射。故而在实际搭建光路系统的过程中,探测光进入光电探测器之前的光路中加入合适的滤波片,这样就可以直接使用光学方法滤除将进入光电探测器杂散光,消除其噪声干扰,提高信号测量的信噪比。

### 3.3.4 时空分辨的优化

在泵浦探测技术中,为了能够对各种超快动力学过程进行有意义的探测,这要求泵浦光和探测光均具有小于探测动力学过程特征时间的超短的脉冲宽度。

这即是对系统的光源提出了超快高精度高重复性的需求。飞秒激光器无疑成为了最符合这些要求的光源。本系统所使用的激光器为美国光谱物理公司生产的锁模钛宝石激光器系统 (Spectra Physics, Tsunami)。

在一般的泵浦—探测实验优化中,泵浦光和探测光来自同一光源并经过分束器获得。通常分开的两束其光强比小于 1:10,这样通过控制探测光的功率来降低其对样品性质的干扰。并不排除两束光也可以来自经过同步后的两个脉冲光源,也可保证泵浦光与探测光的的同时性。系统中为了节约实验资源我们只使用了一种光源。

程控高精度线性位移平台用来控制两束光的时延,可以放置于任一束光的光路上。通过程序对其的控制,完成平移台在微米精度级别的移动从而改变其中一束光的光程,从而达到两束光的相对时延 fs 级别精确度的改变。故而该平台能够用来进行百 fs 量级的超快自旋动力学研究。

关于时间分辨,在系统的优化过程中,为了尽可能提高入射到样品上两束光的时间分辨,我们使用分束器将部分激光通过倍频晶体产生的 385nm 脉冲作为泵浦光,剩余部分则作为探测光。这样较之光子光纤晶体光路中激光脉冲的展宽得到了最大限度的抑制,使得超快退磁测量过程中的时间分辨可如图 3.7 所示达到亚皮秒量级。但同时两束光波长差距的增加也一定程度上影响了光束的聚焦,故而此时使用了 NA=0.65 的消色差物镜来完成双光束在样品表面的同时聚焦,并且切换为磁光克尔

效应测量系统。

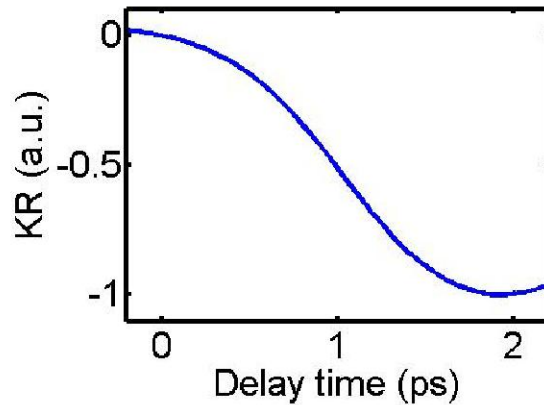


图3.7 快速退磁过程中的动态磁光克尔旋转信号 $\theta_K$

与此同时，克尔模式的测量极大程度上限制了样品的角度旋转，致使外加磁场与样品方向无法自由旋转。故而在之后的动态测量中均使用了图3.5所示的法拉第测量模式。样品前消色差透镜的使用牺牲了使用物镜聚焦两光斑时所能承受的较长波长差，直接限制最终系统中泵浦光不能由激光器出射脉冲激光倍频至短波长产生。此时的光学探测如图3.5所描述，对于泵浦光束，自相关仪测得其脉冲宽度为150 fs。而对于探测光束，依据产品色散曲线[32]计算得到 $\lambda = 820\text{nm}$ 时脉冲宽度约为0.98ps，卷积计算得到时间分辨率为0.99ps，与图3.8所示退磁信号拟合的特征时间相符，该特征时间明显大于使用物镜时测得快速退磁过程特征时间。

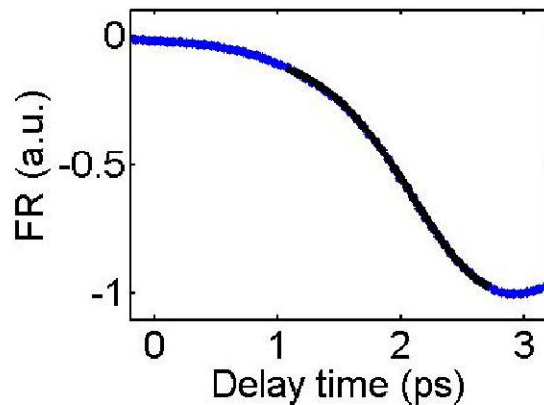


图3.8 快速退磁过程中的动态法拉第旋转信号 $\theta_F$

而关于空间分辨，我们的超快磁化动力学探测系统具备两种空间扫描模式。

模式1为通过扫描泵浦光与探测光的相对位置，得到泵浦光激发带来的时间和空间的变化。在两束光的相对时延 $\Delta t=0$ 时，选择非磁畴壁的位探测泵浦光在空间扫描下得到法拉第旋转信号 $\theta_F$ ，确认了其通过高斯拟合得到两束光的高空间分辨率

（类比于克尔显微镜）。通过不同时刻的扫描可以得到如下图 3.8 的二维映射关系，反映了体系的退磁恢复的空间演化过程。

可以看出，随着时间的演化材料空间上的退磁信号并未发生类似于扩散的展宽现象。据此推测能量在材料体系中迅速通过相互耦合作用转移，而不在空间上实现传递。

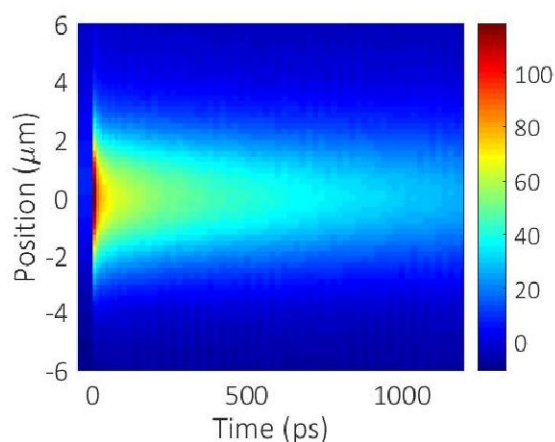


图 3.8 CoFeB/MgO 薄膜的退磁信号 $\theta_F$ 空间演化过程

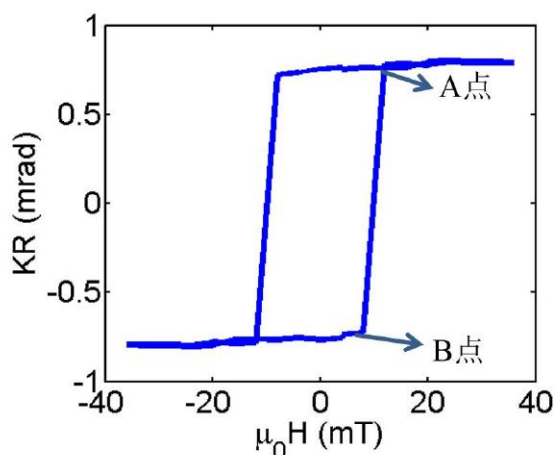


图 3.9 CoFeB/MgO 薄膜的典型磁滞回线

空间扫描模式 2 则通过固定样品的三维平移台的移动来实现区域微米精度的逐点扫描。我们对于样品的同一区域在不同的磁场情况下进行了模式 2 的扫描，其测量结果如下图 3.10~3.12。描述磁场的 A, B 点如图 3.9 所示，磁滞回线中磁场从负向开始单一方向扫描按顺序先后通过 B 点和 A 点即为空间扫描时的磁场条件。 $\Delta t$  则为泵浦光脉冲和探测光脉冲的时间延迟。

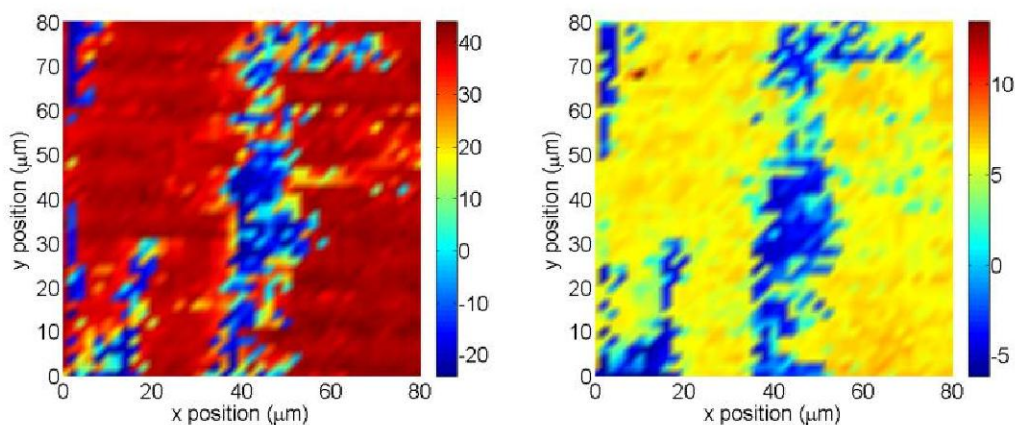


图 3.10A 点,  $\Delta t=0$  和  $\Delta t=350\text{ps}$  的磁化空间分布

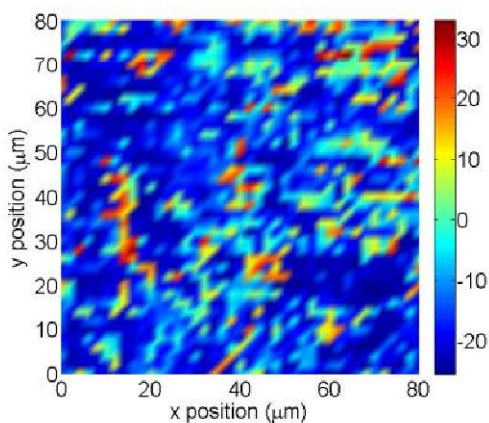


图 3.11 B 点,  $\Delta t=0$  的磁化空间分布

图 3.10 高空间分辨地反映了不同区域退磁恢复过程的动态变化。两图有明显一致的信号轮廓，合理怀疑轮廓即为该条件下磁畴的畴壁。

图 3.10 与图 3.11 对比了不同的磁化状态下样品退磁信号在空间上的差异。此时两图中信号的符号相反，且轮廓差异明显。

## 第四章 CoFeB/MgO 铁磁薄膜的超快自旋动力学研究

### 4.1 引言

自旋转矩磁随机存储器 (spin transfer torque magnetic random access memory, STT-MRAM) 因其低功耗、高速、非易失性引起了研究者的广泛关注[33], 具有高隧道磁阻比的磁隧道结 (magnetic tunnel junction, MTJ) 结构是其不可或缺的重要组成部分[34]。为了进一步降低功耗、增加存储容量、提高写入速度, 这要求相应的磁性材料应具有较高的磁各向异性和适当的阻尼常数[35]。具有 MgO 势垒的 CoFeB 薄膜因磁阻值较高, 且与 MgO 层的接触使薄膜表现出较大的垂直磁各向异性而被广泛研究用于上述结构[36][37][38][39]。此外, 降低磁存储器件的写入电流要求磁性材料具有低阻尼系数, 而提高操作速度则要求高阻尼系数利于减少自旋切换时间。因此 CoFeB / MgO 薄膜的磁化动力学和阻尼研究显得十分重要。

吉尔伯特阻尼本质上是源于自旋轨道相互作用, 与  $\xi^2 / W$  成正比, 其中  $\xi$  是自旋轨道耦合能,  $W$  是  $d$  能带宽度[40]。此外, 还有一些其他因素, 如厚度, 覆盖层和磁各向异性也影响着阻尼常数[41][42]。当铁磁层的厚度足够薄时, 铁磁层产生的自旋电流将流入相邻层, 增加电子散射率, 从而增强阻尼值。在相对厚的 CoFeB 膜的情况下,  $\alpha$  具有约 0.004[43] 的较小值, 此时薄膜显示面内各向异性。要实现垂直磁各向异性需要 CoFeB 膜更薄, 而随着 CoFeB 厚度的减小  $\alpha$  将增加。我们采用抽运探测技术 (时间分辨磁光法拉第效应, TRMOFE) 来获得阻尼常数, 这与传统的铁磁共振技术 (FMR) 类似。Satoshi Iihama 等人用这两种方式测量 CoFeB 薄膜并进行对比, 在高外部磁场, 获得了对于 1.2nm 厚的 CoFeB 膜的较小  $\alpha$  值约为 0.01[44][45]。通常在高外部磁场下可以抑制其他外在因素对磁化动力学的贡献, 因为此时磁化动力学由外部场主导而不是由非均匀有效场支配, 但很少有人在小外部磁场下进行测量研究影响阻尼常数的机制。在本章中, 我们报告了在较小外部磁场下使用 TRMOFE 测量 CoFeB / MgO 薄膜的吉尔伯特阻尼  $\alpha$  值进行系统的研究。

### 4.2 静态磁性

我们研究的样品是超高真空磁控溅射方法生长的厚度为 1nm 的 CoFeB/MgO 薄膜。使用时间磁光克尔效应 (装置如图 3.6 所示) 沿着两个面外易轴方向和面内难轴方向测得的磁滞曲线如图 4.1 (图中蓝色线代表外加磁场方向垂直于薄膜表面的面外方向, 红色线代表外加磁场方向平行于薄膜表面的面内方向)。

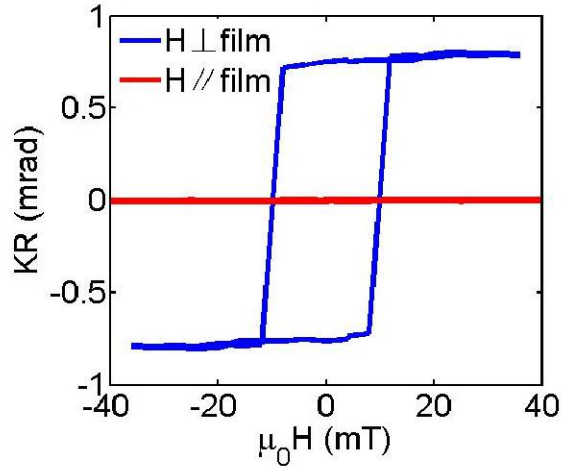


图 4.1 CoFeB/MgO 薄膜的静态磁滞回线

如图 4.1 所示，在测量磁场范围内，面内方向磁场下克尔转角远远小于面外方向。显然，该磁性薄膜有较强的垂直磁各向异性（PMA），这是由于 CoFeB 和 MgO 的界面效应造成的[38]。根据磁光克尔效应测得磁化转角为相对单位，由 M-H 回线可知样品材料 CoFeB/MgO 薄膜的易轴矫顽力为  $H_c \approx 11 \text{ mT}$ 。

### 4.3 CoFeB/MgO 铁磁薄膜超快磁化动力学测量

#### 4.3.1 实验方法

在定量分析中，我们首先通过使用以下唯象的函数公式拟合实验数据来评估进动频率和进动弛豫时间，该函数是磁化的恢复（第一项）和磁化进动的衰减（第二项）的总和：

$$\theta_F(t) \propto A \exp(-vt) + A_0 \exp\left(\frac{t}{\tau}\right) \sin(2\pi ft + \phi_0) + B \quad (4.1)$$

其中  $A$ 、 $v$  和  $B$  分别是退磁幅度，恢复速率和偏移。 $A_0$ 、 $f$ 、 $\tau$  和  $\phi_0$  分别是进动幅度，进动频率，磁化进动弛豫时间和初始相位。据公式 (4.1) 直接拟合 TRFR 的结果即可得到  $f$ 、 $1/\tau$  以及通过计算得到有效阻尼系数  $\alpha_{eff}$ （据  $\alpha_{eff} = (2\pi f\tau)^{-1}$  得到）该系数并非是材料的固有属性，而受到多种测量因素的影响，如泵浦能量密度，施加磁场方向，磁场强度等。

这里，我们由 LLG 方程计算进动频率  $f$ ，反转寿命  $1/\tau$ ：

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{eff} + \alpha \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (4.2)$$

其中  $\mathbf{m}$  是磁化的单位矢量， $\mathbf{H}_{eff}$  是磁场矢量，包括外场和各向异性场。对于垂

直各向异性材料（磁矩  $M$  和各向异性场均垂直于薄膜表面）、磁化平衡方向的小磁化进动，该方程被线性化，得到以下式（4.3）至（4.6）[46]：

$$f = \frac{\gamma\mu_0}{2\pi} \sqrt{H_1 H_2} \quad (4.3)$$

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{2} \alpha \gamma \mu_0 (H_1 + H_2) \quad (4.4)$$

$$H_1 = H_{ext} \cos(\theta - \theta_H) + H_k^{eff} \cos^2 \theta \quad (4.5)$$

$$H_2 = H_{ext} \cos(\theta - \theta_H) + H_k^{eff} \cos 2\theta \quad (4.6)$$

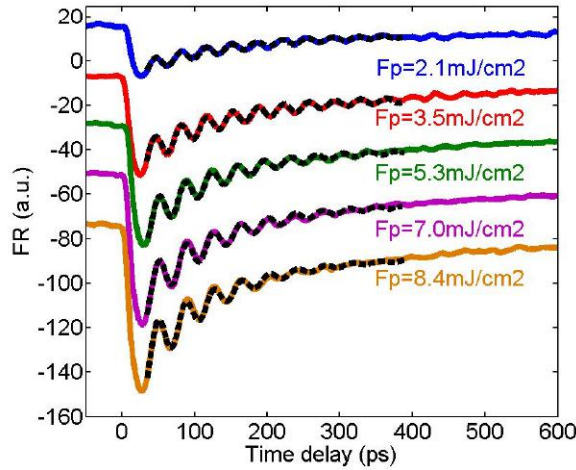


图 4.2 不同泵浦能量密度下典型时间分辨法拉第信号 ( $\theta_H=60^\circ$   $\mu_0 H_{ext}=400mT$  时)。黑色曲线为数据拟合曲线。

通过式（4.3）（4.4）来拟合磁化进动频率  $f$  和反转寿命  $1/\tau$ ，其中  $H_1$ ， $H_2$  为场分量（与磁自由能曲面曲率有关）。磁化角  $\theta$  通过平衡外场和各向异性场提供的转矩条件来评价：

$$H_{ext} \sin(\theta_H - \theta) - \frac{1}{2} H_k^{eff} \sin 2\theta = 0 \quad (4.7)$$

其中  $H_k^{eff}$  和  $\gamma$  分别是有效各向异性场和旋磁比，由  $H_k^{eff} = 2K_u^{eff}/M_s$  和  $\gamma = g\mu_B/\hbar$  定义，其中  $K_u^{eff}$  为磁各向异性性能， $g$  为朗德  $g$  因子， $\mu_B$  是玻尔磁子， $\hbar$  是普朗克常数。

#### 4.3.2 泵浦能量密度的影响

图 4.2 给出了了泵浦能量密度下 ( $2.1\sim 8.4\text{mJ/cm}^2$ )，CoFeB / MgO 薄膜的典型 TRFR 信号显示了其磁化动力学过程。该信号在固定的外场角度 $\theta_H=60^\circ$ 下测量。从图上可以看到，随着超快激光的泵浦，样品随之产生的变化明显分为两个阶段。首先是样品材料的迅速退磁，反映在图中为信号的第一个下降沿，对该下降沿的放大观察对应于文中的图 3.7 和 3.8。该阶段特征时间均在亚 ps 的时间量级，这与文中第二章介绍的唯象“三温度模型”理论相互契合。而对于不同的泵浦能量密度则显示出不同幅度的退磁信号，推测是有能量密度越高相应的自旋温度  $T_s$  升高而导致。

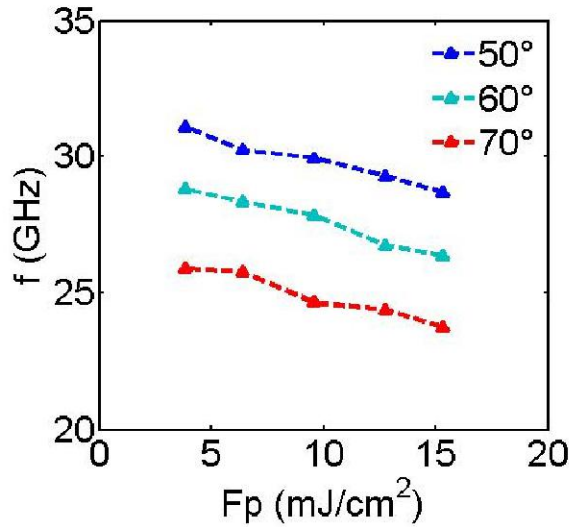


图 4.3 不同角度下, (a)磁化进动频率  $f$  (b)反转寿命  $1/\tau$  (c)有效阻尼 $\alpha_{eff}$ 的泵浦能量密度依赖性 ( $\mu_0 H_{ext} = 400\text{mT}$ )。

图 4.3-4.5 显示了固定施加磁场  $\mu_0 H_{ext} = 400\text{mT}$  的情况下，几个不同的外场角度下薄膜磁化动力学过程中进动频率  $f$ ，反转寿命  $1/\tau$ （依据式 (4.1) 拟合磁化进动曲线得到）以及有效阻尼系数  $\alpha_{eff}$  的泵浦能量密度  $F_p$  依赖性关系。可以看到  $f$  随着泵浦通量  $F_p$  的增加而减小，这种情况可以通过激光加热使晶格温度增加而引起的  $H_k^{eff}$  减少来解释。在更低能量密度下， $f$  值仍然倾向于继续升高。当  $F_p$  足够小时， $f$  应该独立于  $F_p$ 。然而，这些薄膜的法拉第旋转角度并不大，因此我们无法在更低的泵浦通量下观察到具有足够信噪比的进动信号。而增加泵浦通量， $1/\tau$ ， $\alpha$  均有显著增长的变化。这是因为晶格温度  $T$  与居里温度  $T_c$  的比率增加，系统温度  $T$  在  $10\text{ps}$  时间尺度下可达  $500\text{K}$ [47]，磁化弛豫时间从根本上取决于易受温度影响的磁化率 [48]。这之前泵浦通量对阻尼影响的研究一致[47][49]。本文中我们在泵浦能量密度  $F_p=6.4\text{mJ/cm}^2$  进行其余的测试测量。

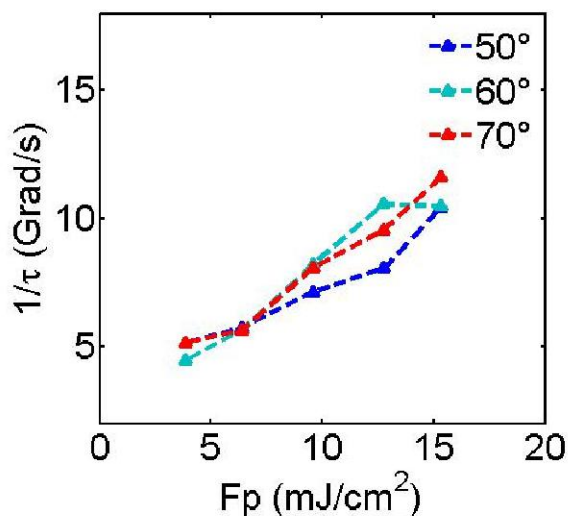


图 4.4 不同角度下, (a)磁化进动频率  $f$  (b)反转寿命  $1/\tau$  (c)有效阻尼 $\alpha_{\text{eff}}$ 的泵浦能量密度依赖性 ( $\mu_0 H_{\text{ext}} = 400\text{mT}$ )。

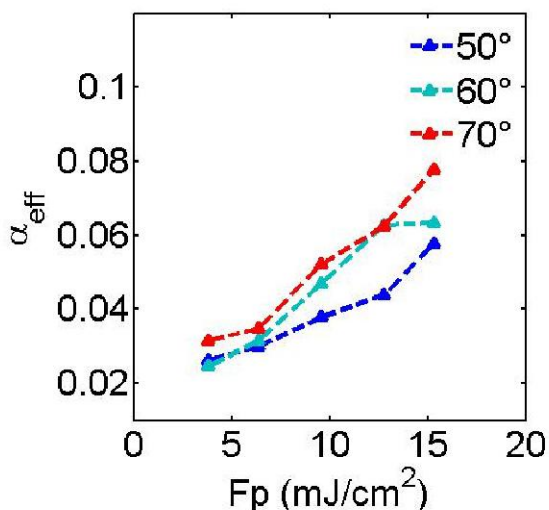


图 4.5 不同角度下, (a)磁化进动频率  $f$  (b)反转寿命  $1/\tau$  (c)有效阻尼 $\alpha_{\text{eff}}$ 的泵浦能量密度依赖性 ( $\mu_0 H_{\text{ext}} = 400\text{mT}$ )。

#### 4.3.3 磁场强度及角度的影响

图 4.6 中在几个固定的外场角度下 $\theta = 50^\circ, 60^\circ, 70^\circ, 80^\circ$ , 显示了进动频率  $f$  的施加场强度  $H_{\text{ext}}$  的相关性。图中各点为由相应 TRFR 实验数据通过式 (4.1) 拟合得到的进动频率  $f$ 。而实线则为通过式 (4.3) (4.5) (4.6) 拟合  $f$  数值点得到, 其中磁化角  $\theta$  由式 (4.7) 确定作为非固定值参数。由此得到拟合参数各向异性场  $\mu_0 H_k^{\text{eff}} \sim 670\text{mT}$ , 朗德因子  $g \sim 2.01$ , 与文献所述 CoFeB/MgO 薄膜参数一致[33]。

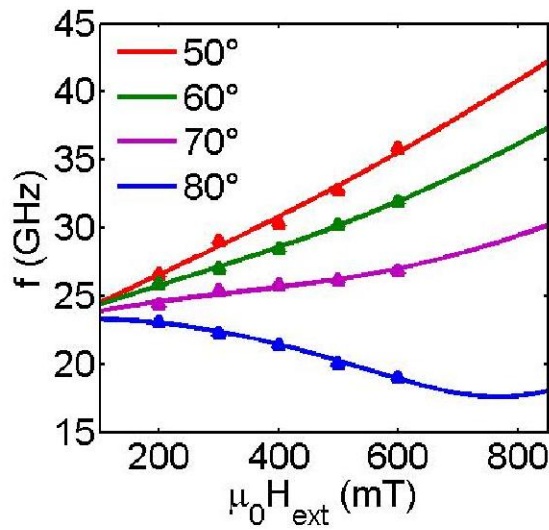


图 4.6 磁化进动频率  $f$  的外场强度  $H_{ext}$  相关性，图中实点为拟合进动过程得到，曲线则为依据 LLG 拓展方程拟合图中实点得到。

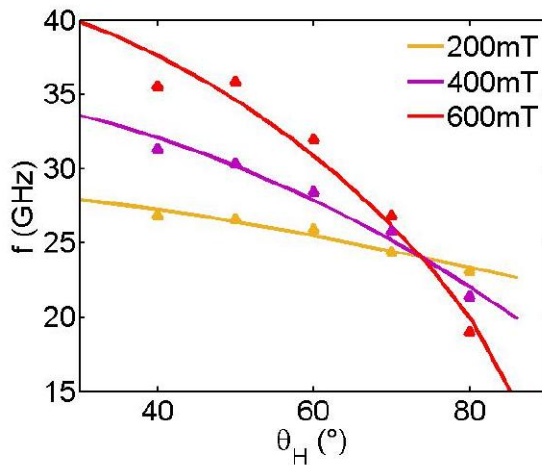


图 4.7 磁化进动频率  $f$  的外场角度  $\theta_H$  相关性，图中实点为拟合进动过程得到，曲线则为依据 LLG 拓展方程拟合图中实点得到。

可以看到拟合  $f$  实线与  $f$  数值点符合良好。一般情况下，随着磁场强度的增加进动频率叶呈现一定关系的的增长。而对于在  $\theta_H = 80^\circ$  处获得的数据，在进动频率随磁场增长之前有明显的下降区域，且  $f$  出现极小值。在  $H_{ext} \approx H_k^{eff}$  处出现最小  $f$  值可理解为，当施加场数值达到  $H_k^{eff}$  时磁化平衡方向与施加的场方向一致，这对应于磁化进动的最小幅度。当外场角度更接近于  $90^\circ$  时，在  $H_{ext} \approx H_k^{eff}$  处出现的最小  $f$  值的趋势将越显著。

图 4.7 中在几个固定的磁场强度下显示了进动频率  $f$  的施加场角度  $\theta_H$  的相关性。

可从图中看出，随着外场角度的增大，进动频率按一定规律衰减。

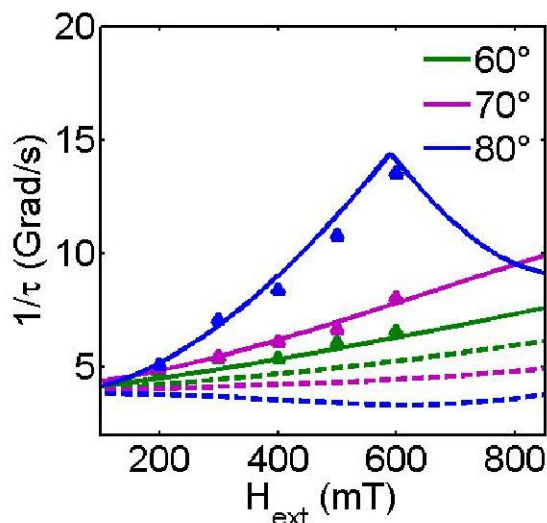


图 4.8 反转寿命  $1/\tau$  的外场强度  $H_{\text{ext}}$  相关性。虚线是依据公式 (4.4) 计算出的结果，实线则为考虑了各向异性空间分布的理论计算结果。

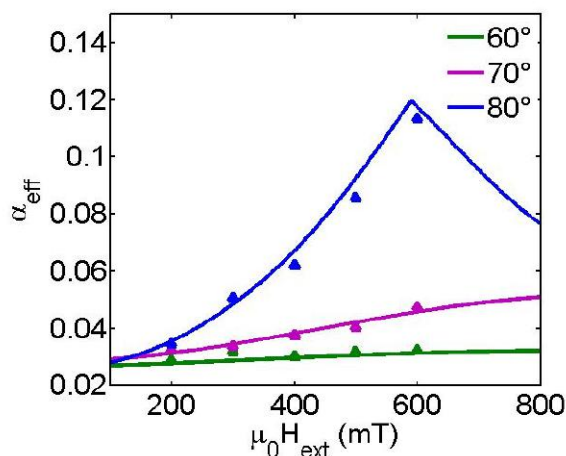


图 4.9 有效阻尼  $\alpha_{\text{eff}}$  的外场强度  $H_{\text{ext}}$  相关性。

而在图 4.8 中，各点分别为由相应外场角度下 TRFR 实验数据通过式 (4.1) 拟合得到的反转寿命  $1/\tau$  数值，和由此通过  $\alpha_{\text{eff}} = (2\pi f\tau)^{-1}$  计算得到的有效阻尼系数  $\alpha_{\text{eff}}$ 。在拟合数值点  $1/\tau$  时，对式 (4.4) 中的阻尼  $\alpha$  取固定值 (0.026) 得到图 4.8 中的虚线，这样虚线与图 4.6 中实线趋势一致。

可以看到，通过 LLG 方程很好地解释了  $f$ 。但在  $1/\tau$  上有稍大误差，这是由于多种外在测量因素影响磁各向异性的空间变化导致的非均匀效应，类似于铁磁共振测量中的线宽展宽效应[50]。类比于铁磁共振谱中：

$$\frac{1}{\tau_{calc.}} = \frac{1}{2} \alpha \gamma (H_1 + H_2) + \frac{1}{2} \left| \frac{d\varpi}{dH_k^{eff}} \right| \Delta H_k^{eff} \quad (4.8)$$

式中第一项为材料固有吉尔伯特阻尼，第二项为非均匀展宽的贡献。 $\Delta H_k^{eff}$  表示磁各向异性较于平均值的偏差， $\frac{d\varpi}{dH_k^{eff}}$  的大小可由式 (4.3) - (4.7) 计算得到（其中  $\varpi = 2\pi f$ ）。图 4.8 中实线为按照公式 (4.8) 增加非均匀项后的拟合曲线，我们发现，考虑了各向异性空间分布后  $1/\tau$  通过 LLG 方程得到了很好的解释。在当前较小外磁场条件下，磁化进动的非均匀效应可能是由于材料的多畴结构造成的；而在高场区域（ $H_{ext} \gg H_k^{eff}$ ）中可以忽略不计，因为此时多磁畴的磁化方向变得均匀。这也反映在对于高场区域来说，方程式第二项中的导数接近于零。与之前研究者们对标准垂直各向异性的 CoFeB/MgO 薄膜测量描述相一致

#### 4.4 小结

我们使用时间分辨磁光法拉第效应测量研究了垂直各向异性 CoFeB/MgO 薄膜的磁化进动动力学。动力学过程由 LLG 方程式进行分析，磁化进动频率在不同外场角度和强度下均能很好的被解释，而在低场条件下对于进动反转寿命和有效阻尼则需在考虑到垂直磁各向异性场的空间幅度分布才能更好的得到解释。此外，抽运通量的增加使晶格温度升高直接导致有效阻尼的增长。对于 1nm 厚具有高垂直磁各向异性的 CoFeB/MgO 薄膜经分析得到吉尔伯特阻尼常数约为 0.026。通过对 TRFR 的分析得到了样品的各向异性场 670mT 和朗德因子 2.01，这与文献所述 CoFeB/MgO 薄膜参数一致。阻尼因子会随着泵浦光的能量密度的增加而增大，当泵浦光的能量密度从 3.8mJ/cm<sup>2</sup> 增加至 15.3mJ/cm<sup>2</sup> 时，阻尼因子也随之增加，这是由泵浦光的能量密度增加带来的暂态热效应导致。基于 LLG 方程理论，实验测量到的磁化进动频率在不同直流外磁场角度和强度下均能很好的被解释，而在低磁场条件下进动反转寿命和有效阻尼在考虑了垂直磁各向异性场的空间幅度分布之后也能很好的得到解释。这与我们的预期相符，充分验证了实验平台的稳定性和可靠性。

## 第五章 二维材料 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 的超快自旋动力学研究

### 5.1 引言

层状二维材料是当前量子物理的重要研究内容[51][52]。由于其中量子限制原子尺寸,许多新奇量子现象在实验上得以观察。内禀磁性的二维范德华(2D vdW)材料不仅为基础磁学理论,如 XY 模型[53][54], Ising 模型[55]的验证提供了良好的平台,还为新奇量子相,包括新型超导体,量子自旋液体,量子霍尔效应等的发现带来了丰富的可能性[56]。而在另一方面,如何设计 2D vdW 材料的组成结构、调控 2D vdW 磁性材料与其他物理量的相互作用也是人们关注的重要课题。通过材料堆垛和异质结加工,静电场可以调控 2D vdW 绝缘态的  $\text{CrI}_3$ [57][58][59],金属态的  $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ [60]和半导体的  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_3$ [61]中的自旋态; $\text{CrI}_3$  作为隧穿势垒自旋滤波磁隧道结显示了高于传统材料的巨隧道磁阻效应[62];过渡金属二硫化物中的自旋可以被 2D vdW 铁磁材料调控[63]。这些进展演示了它们走向应用的潜力。然而,2D vdW 磁性材料的实际应用还需要解决很多关键的原理性问题[64]。其中磁性状态的高速切换是其中之一[65],它直接决定了信息写入和读出的速率上限;与之相关的另一个问题则是磁性材料的固有阻尼,降低磁存储器件的写入电流要求磁性材料具有低阻尼系数,而提高操作速度则要求高阻尼系数利于减少自旋切换时间。到目前为止,2D vdW 磁性材料的超快磁化动力学仍然缺乏研究,一方面因为 2D vdW 磁性材料的尺寸通常受到机械剥离法的限制,无法采用如铁磁自旋共振等宏观方式研究[66];另一方面磁化超快过程处于皮秒量级,需要非常快的探针测量磁化动力学过程[67];同时室温 2D vdW 磁性材料的缺乏也对设备有低温要求。

2D vdW 磁性材料的尺寸限制首先对自旋动力学探测系统提出了空间分辨的要求。在能实现自旋有序高空间分辨的多种动态测量手段中,基于 X 射线磁圆二色性技术的磁透射 X 射线显微镜[68]和 X 射线光电发射电子显微镜[69]因 X 射线波长较短而普遍具有数十纳米的空间分辨能力,但通常时间分辨精度在数十皮秒以上。而另一方面利用超快飞秒脉冲激光泵浦探测技术结合磁光技术[70],如磁光克尔效应和法拉第效应[68][71],很容易实现亚皮秒的时间分辨[72],然而进一步减小在样品表面的聚焦光斑尺寸才能达到 2D vdW 材料对空间分辨率的要求。

### 5.2 静态磁性

我们研究的样品首先通过化学气相沉积 (Chemical Vapor Deposition, CVD) 技

术得到  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  晶体，之后再通过机械剥离法得到数层的  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 。样品在光学显微镜下如图 5.1 所示，熔融石英作为样品的衬底便于激光透射，薄层  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  位于两个 h-BN 层封装中使其性质稳定。

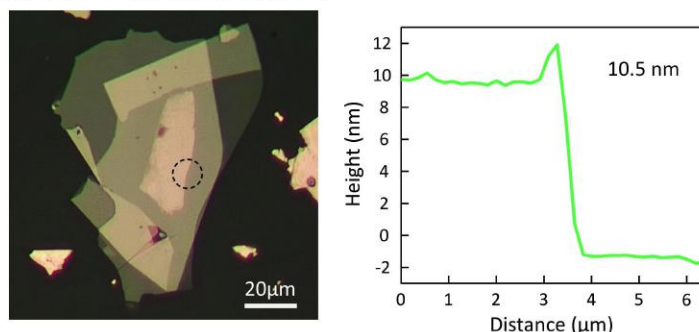


图 5.1 光镜下薄层  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  的图像及其 AFM 高度测量

由于层状的  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  材料居里温度约为  $40\text{K}\sim 50\text{K}$  远小于块体  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  材料的居里温度  $T_C=75\text{K}$ [61]，故而在之后的所有测量中均将温度设定在  $T=10\text{K}$  便于磁性测量。

基于磁光克尔效应测量装置（如图 3.6 所示），光束沿着样品面外易轴方向测得  $T=10\text{K}$  时的磁化曲线如图 5.2。

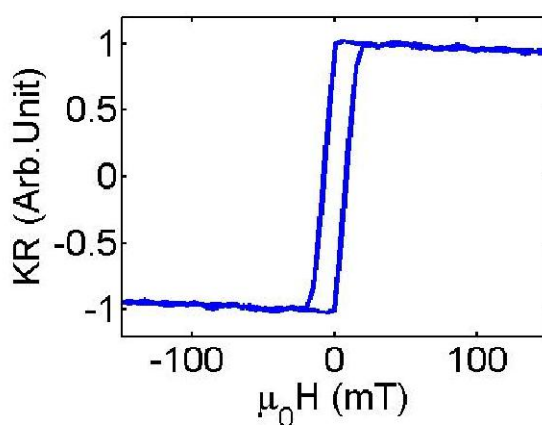


图 5.2 层状  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  的静态磁滞回线

在测量磁场范围内，由磁化曲线可知样品材料层状  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  的易轴矫顽力为  $H_c\approx 8\text{mT}$ ，其中根据磁光克尔效应测得磁化转角为相对单位。

$\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  材料的各向异性场远小于第四章所描述的  $\text{CoFeB}/\text{MgO}$  薄膜样品，使得测量时磁滞回线对样品角度十分敏感。

### 5.3 层状 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 超快磁化动力学测量

图 5.3~5.5 给出了不同外场强度下，层状的  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  材料的典型 TRFR 信号显示了其磁化动力学过程。该信号在固定的外场角度  $\theta_H=50^\circ$  下测量。

从图上可以看到，随着超快激光的泵浦，样品随之产生的变化明显分为三个阶段。

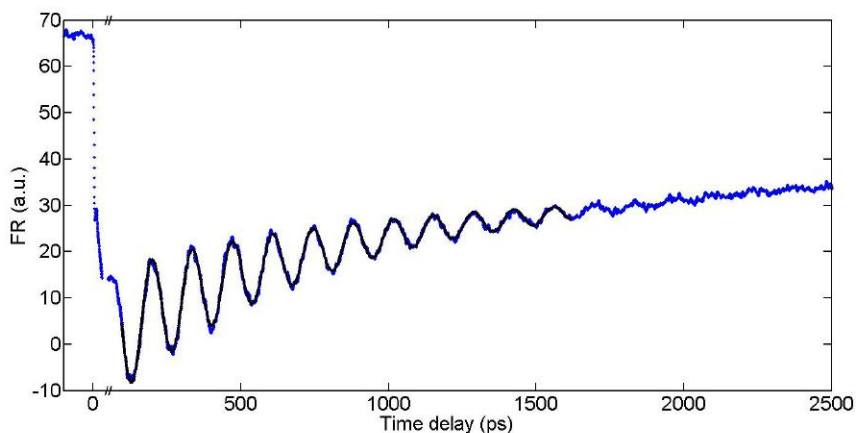


图 5.3  $\theta_H=50^\circ$   $\mu_0 H_{ext} = 200mT$  时典型时间分辨法拉第信号，黑色曲线为数据拟合曲线。

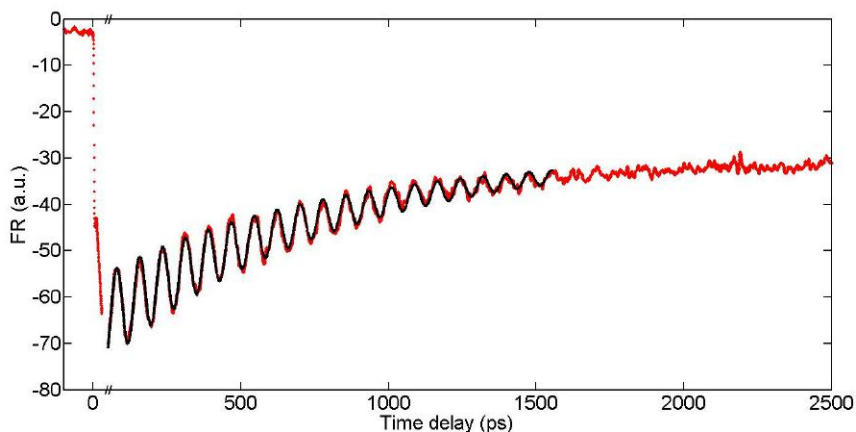


图 5.4  $\theta_H=50^\circ$   $\mu_0 H_{ext} = 400mT$  时典型时间分辨法拉第信号，黑色曲线为数据拟合曲线。

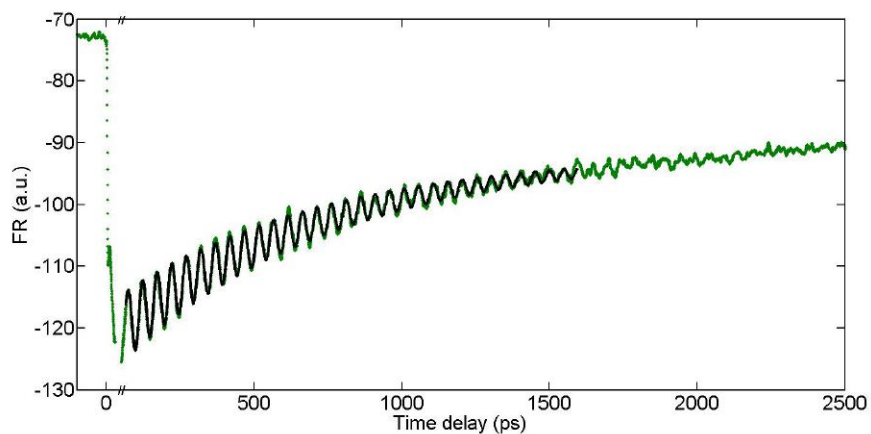


图 5.5  $\theta_H=50^\circ$   $\mu_0 H_{ext} = 600mT$  时典型时间分辨法拉第信号，黑色曲线为数据拟合曲线。

首先是样品材料的迅速退磁，反映在图中为信号的第一个下降沿，该阶段特征

时间均在亚 ps 的时间量级，这与文中第二章介绍的唯象“三温度模型”理论，相互契合。对于不同的磁场强度，该退磁信号显示出一致的幅度。

接下来产生了图中第二个相对缓慢的下降沿，该阶段时间尺度大约在数 ps。不同磁场强度下，该阶段幅度也没有明显差别。我们猜测此阶段为磁矩围绕因飞秒激光激发而产生的瞬时有效场方向的进动过程。

最后信号的衰减振荡显示了磁矩围绕总有效磁场的持续进动过程。随着外加磁场强度的增加可以看到信号振荡的幅度也有所减小。推测是外磁场作为分量的改变影响了总有效磁场的角度，使得进动幅度随之改变。

## 第六章 总结

本论文的主要以 CoFeB/MgO 磁性薄膜和二维范德华材料为载体，通过时间分辨的法拉第旋转技术对其自旋动力学过程进行实验研究以及理论分析。论文主要研究内容和成果如下：

第一章简要介绍了磁存储和自旋电子器件的发展情况以及自旋电子学的背景知识。

第二章首先对超快光学技术、超快时间尺度的自旋动力学内容进行了阐述。本章还重点描述了光激发磁动力学的超快退磁及磁矩进动过程及三温度模型对其的理论解释，此外还对进动中吉尔伯特阻尼产生的物理原因做出了介绍。

第三章主要介绍了平台搭建的过程以及其中应用到的实验技术。首先对实验研究磁性薄膜的自旋动力学过程中涉及到磁光效应实验测量技术进行了详尽的介绍，分为磁光克尔和法拉第两种；之后对使用到的设备和仪器的作用做了简单描述；最后详细阐述了基于时间分辨泵浦-探测技术搭建的实验测量系统的时间分辨能力可达亚皮秒量级，光束空间分辨能力和样品空间分辨能力均可达微米量级。

第四章我们系统研究了 CoFeB/MgO 磁性薄膜的自旋动力学受到外界因素的影响。通过对材料静态磁化曲线和磁化进动过程数据的处理得到了材料的矫顽力、磁向异性场、朗德因子和吉尔伯特阻尼因子等参数，并分析研究了泵浦激光能量，外磁场强度和角度对磁性薄膜超快动力学过程和阻尼因子的影响。测量得到外界磁场对吉尔伯特阻尼的影响与通过 LLG 方程理论及其关于各向异性空间分布的微小调整完全吻合。

第五章我们简要介绍了典型二维范德华材料薄层 Cr<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>Te<sub>6</sub> 上超快自旋动力学过程的测量结果。



## 参考文献

- [1] [Http://www-03.Ibm.Com/ibm/history/exhibits/storage/storage\\_350.Html](http://www-03.ibm.com/ibm/history/exhibits/storage/storage_350.html).
- [2] A. Taratorin, S. Yuan and V. Nikitin. High data rate recording Moving to 2 Gbits[J]. Journal of Applied Physics, 2003, 93, 6444.
- [3] Samuel W. Yuan, E. Lee, W. Hsiao, H. Santini, et al. Advanced Write Heads for High Density and High Data Rate Recording[J]. IEEE Transactions on Magnetics, 2002, 38: 1873.
- [4] <http://www.mram-info.com/history>.
- [5] [https://en.wikipedia.org/wiki/Transistor\\_count](https://en.wikipedia.org/wiki/Transistor_count)
- [6] Coughlin TM. Digital storage in consumer electronics[M] Springer 2008.
- [7] 万骞, 超快时间分辨磁光系统的搭建与钙钛矿锰氧化物研究[D] 中国科学院大学, 中国科学院物理研究, 2017.5.
- [8] Bigot J-Y. Femtosecond magneto-optical processes in metals[M] Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IV - Physics, 2001, 2(10): 1483-1504.
- [9] Landau LD, Lifshitz EM, King AL. Electrodynamics of continuous media[M]. Butterworth-Heinemann. 1984.
- [10] Iwata Y, Asao Y, Hosotani K, et al. Magnetic random access memory. [M]. US. 2004.
- [11] 李巍, 复杂磁结构的超快自旋动力学研究[D] 华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室. 2018.5.
- [12] Tudosa I, Stamm C, Kashuba AB, King F, Siegmann HC, Stohr J, Ju G, Lu B, Weller D. The ultimate speed of magnetic switching in granular recording media[J]. Nature, 2004, 428(6985): 831-833.
- [13] S.-K. Kim. Micromagnetic computer simulations of spin waves in nanometre-scale patterned magnetic elements, J. Phys. D Appl. Phys, 2010, 43 264004.
- [14] Anjan Barman, Arabinda Haldar. Time-Domain Study of Magnetization Dynamics in Magnetic Thin Films and Micro- and Nanostructures[M]. Elsevier Inc. 2014, ISSN 0081-1947.
- [15] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel[J]. Physical review letters. 1996 76 (22) 4250-4253.
- [16] AGRANAT M, ASHITKOV S, GRANOVSKY A, RUKMAN G. Interaction between

- picosecond laser-pulses with the electron, spin and phonon subsystems of nickel[J]. *Zhurnal Eksperimentalnoi I Teoreticheskoi Fiziki*, 1984, 86(4): 1376-1379.
- [17] Vaterlaus A, Beutler T, Guarisco D, Lutz M, Meier F. Spin-lattice relaxation in ferromagnets studied by time-resolved spin-polarized photoemission[J]. *Physical Review B*, 1992, 46(9): 5280-5286.
- [18] Hübner W, Bennemann KH. Simple theory for spin-lattice relaxation in metallic rare-earth ferromagnets[J]. *Physical Review B*, 1996, 53(6): 3422-3427.
- [19] Aeschlimann M, Bauer M, Pawlik S, Weber W, Burgermeister R, Oberli D, Siegmann HC. Ultrafast spin-dependent electron dynamics in fcc Co[J]. *Physical Review Letters*, 1997, 79(25): 5158-5161.
- [20] Hohlfeld J, Matthias E, Knorren R, Bennemann KH. Nonequilibrium magnetization dynamics of nickel[J]. *Physical Review Letters*, 1997, 78(25): 4861-4864.
- [21] Scholl A, Baumgarten L, Jacquemin R, Eberhardt W. Ultrafast spin dynamics of ferromagnetic thin films observed by fs spin-resolved two-photon photoemission[J]. *Physical Review Letters*, 1997, 79(25): 5146-5149.
- [22] Zhang GP, Hübner W. Laser-induced ultrafast demagnetization in ferromagnetic metals[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(14): 3025-3028.
- [23] Ju G, Nurmikko AV, Farrow RFC, Marks RF, Carey MJ, Gurney BA. Ultrafast time resolved photoinduced magnetization rotation in a ferromagnetic/antiferromagnetic exchange coupled system[J]. *Physical Review Letters*, 1999, 82(18): 3705-3708.
- [24] Jean - Yves B, Mircea V. Ultrafast magnetization dynamics of nanostructures[J]. *Annalen Der Physik*, 2013, 525(1-2): 2-30.
- [25] van Kampen M, Jozsa C, Kohlhepp JT, Le Clair P, Lagae L, de Jonge WJM, Koopmans B. All-optical probe of coherent spin waves[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 88(22): 227201.
- [26] Zhang Q, Nurmikko AV, Anguelouch A, Xiao G, Gupta A. Coherent magnetization rotation and phase control by ultrashort optical pulses in Cr O<sub>2</sub> thin films[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(17): 177402.
- [27] Müller GM, Münzenberg M, Miao GX, Gupta A. Activation of additional energy dissipation processes in the magnetization dynamics of epitaxial Chromium dioxide films[J]. *Physical Review B*, 2008, 77(2): 020412.

- [28] J. Stohr, H.C. Siegmann. *Magnetism*. [M] Springer Berlin Heidelberg. 2006
- [29] 崔伯寅, FePt/CoFe 复合膜磁动力学特性的激光泵浦探测研究[D]. 复旦大学, 信息科学与工程学院. 2011,5
- [30] Faraday M. *Experimental researches in electricity*. Nineteenth series. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*. 1846, 136: 1-20
- [31] Kerr J. Xliii. On rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet[J]. *Philosophical Magazine Series 5*, 1877, 3(19): 321-343
- [32] [https://www.newport.com.cn/medias/sys\\_master/images/h66/h0d/8797261004830/SCG-800-CARS-Data-Sheet.pdf](https://www.newport.com.cn/medias/sys_master/images/h66/h0d/8797261004830/SCG-800-CARS-Data-Sheet.pdf).
- [33] Hiroaki Yoda, Tatsuya Kishi, Toshihiko Nagase, et al. High efficient spin transfer torque writing on perpendicular magnetic tunnel junctions for high density MRAMs[J]. *CurrApplPhys*, 2010, 10: 87-89.
- [34] C. Tiusan, M. Sicot, M. Hehn, et al. Fe/MgO interface engineering for high-output-voltage device applications[J]. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 062512.
- [35] S.Mangin, D.Ravelosona, J.A.Katine, et al. Current-induced magnetization reversal in nanopillars with perpendicular anisotropy[J]. *Nat Mater*, 2006, 5: 210.
- [36] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, et al. Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature[J]. *Appl Phys Lett*, 2008, 93: 082508.
- [37] Masahiko Nakayama, Tadashi Kai, Naoharu Shimomura, et al. Spin transfer switching in TbCoFe/CoFeB/MgO/CoFeB/TbCoFe magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy[J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 103: 07A710.
- [38] Chih-Wei Cheng, Wuwei Feng, G. Chern, et al. Effect of cap layer thickness on the perpendicular magnetic anisotropy in top MgO/CoFeB/Ta structures[J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 110: 033916.
- [39] W. X. Wang, Y. Yang, H. Naganuma, et al. The perpendicular anisotropy of Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub> sandwiched between Ta and MgO layers and its application in CoFeB/MgO/CoFeB tunnel junction[J]. *Appl Phys Lett*, 2011, 99: 012502.
- [40] P. He, X. Ma, J.W. Zhang, et al. Quadratic Scaling of Intrinsic Gilbert Damping with Spin-Orbital Coupling in L1<sub>0</sub> FePdPt Films: Experiments and Ab Initio

- Calculations[J]. Phys Rev Lett. 2013, 110: 077203.
- [41] G. Malinowski, K. C. Kuiper, R. Lavrijsen, et al. Magnetization dynamics and Gilbert damping in ultrathin Co<sub>48</sub>Fe<sub>32</sub>B<sub>20</sub> films with out-of-plane anisotropy[J]. Appl Phys Lett, 2009, 94: 102501.
- [42] A. Natarajathinam, Z. R. Tadisina, T. Mewes, et al. Influence of capping layers on CoFeB anisotropy and damping[J]. Journal of Applied Physics, 2012, 112: 053909.
- [43] A. Conca, J. Greser, T. Sebastian, et al. Low spin-wave damping in amorphous Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub> thin films[J]. Journal of Applied Physics, 2013, 113: 213909.
- [44] Satoshi Iihama, Qinli Ma, Takahide Kubota, et al. Damping of Magnetization Precession in Perpendicularly Magnetized CoFeB Alloy Thin Films[J]. App Phys Exp, 2012, 5: 083001.
- [45] Satoshi Iihama, Shigemi Mizukami, Hiroshi Naganuma, et al. Gilbert damping constants of Ta/CoFeB/MgO(Ta) thin films measured by optical detection of precessional magnetization dynamics[J]. Phys Rev B. 2014, 89: 174416.
- [46] S. Mizukami, D. Watanabe, T. Kubota, et al. Time-Resolved Kerr Effect in Very Thin Films of CoCrPt Alloys[J]. Trans. Mag. 2011, 47: 3897-3900.
- [47] Liu Bo, Ruan Xuezhong, Wu Zhenyao, et al. Transient Enhancement of Magnetization damping in CoFeB Film via Pulsedlaser excitation[J]. App. Phys.Lett.,2016, 109: 042401.
- [48] P. Nieves, D. Serantes, U. Atxitia, et al. Quantum Landau-Lifshitz-Bloch Equation and Its Comparison with the Classical Case[J]. Phys. Rev. B. 2014, 90: 104428.
- [49] S. Mizukami, F. Wu, A. Sakuma, et al. Long-Lived Ultrafast Spin Precession in Manganese Alloys Films with a Large Perpendicular Magnetic Anisotropy[J]. Phys. Rev.Lett. 2011, 106: 117201.
- [50] F. Hellman, A. Hoffmann, Y. Tserkovnyak, et al. Interface-Induced Phenomena in Magnetism[J]. Rev. Mod. Phys. 2017, 89: 025006.
- [51] Gong C, Li L, Li Z, et al. Discovery of intrinsic ferromagnetism in two-dimensional van der Waals crystals[J]. Nature, 2017, 546: 265.
- [52] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, et al. Layer-dependent ferromagnetism in a van der Waals crystal down to the monolayer limit[J]. Nature, 2017, 546: 270.
- [53] Berezinskii V. Destruction of long-range order in one-dimensional and

- two-dimensional systems having a continuous symmetry group I. Classical systems[J]. Sov. Phys. JETP, 1971,32: 493.
- [54]Kosterlitz J M, Thouless D J. Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems[J]. J. Phys. C, 1973, 6: 1181.
- [55]Onsager L. Crystal statistics. I. A two-dimensional model with an order–disorder transition[J]. Phys. Rev. 1944,65: 117.
- [56]Burch K S , Mandrus D, Park J G. Magnetism in two-dimensional van der Waals materials[J]. Nature, 2018, 563: 47.
- [57]Huang B, Clark G, Klein D R, et al. Electrical control of 2D magnetism in bilayer CrI<sub>3</sub>[J]. Nat. Nano. 2018, 13: 544.
- [58]Jiang S, Li L ,Wang Z, et al. Controlling magnetism in 2D CrI<sub>3</sub> by electrostatic doping[J]. Nat. Nano. 2018, 13: 549.
- [59]Jiang S, Mak K F, Shan J. Electric-field switching of two-dimensional van der Waals magnets[J]. Nat. Mater, 2018, 17: 406.
- [60]Deng Y, Yu Y, Song Y, et al. Gate-tunable room-temperature ferromagnetism in two-dimensional Fe<sub>3</sub>GeTe<sub>2</sub>[J]. Nature, 2018, 563: 94.
- [61]Wang Z, Zhang, T, Ding M,et al.Electric-field control of magnetism in a few-layered van der Waals ferromagnetic semiconductor[J].Nat. Nano. 2018, 13: 549.
- [62]Song T, Cai X, Tu M W Y, et al. Giant tunneling magnetoresistance in spin-filter van der Waals heterostructures[J]. Science, 2018, 360: 1214.
- [63]Zhong D, Seyler K L, Linpeng X, et al. Van der Waals engineering of ferromagnetic semiconductor heterostructures for spin and valleytronics[J]. Sci. Adv. 2017, 3:e1603113.
- [64]Park J G. Opportunities and challenges of two-dimensional magnetic van der Waals materials: magnetic graphene[J]. J. Phys. Condens. Matter,2016, 28: 301001.
- [65]van Kampen M, Jozsa C, Kohlhepp J T, et al.All-Optical Probe of Coherent Spin Waves[J]. Phys. Rev. Lett. 2002, 88: 227201.
- [66]Hellman F, Hoffmann A,Tserkovnyak Y, et al.Interface-induced phenomena in magnetism[J]. Rev. Mod. Phys. 2017, 89: 025006.
- [67]Li J, Lee M S, He W, et al. Magnetic imaging with femtosecond temporal resolution[J]. Rev. Sci. Instrum. 2009, 80: 073703.

- [68] D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth, *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*[M]. Springer, Berlin, 2002.
- [69] J. Ferre and G. A. Gehring, Linear optical birefringence of magnetic crystals[J]. *Rep. Prog. Phys.* 1984. 47: 513
- [70] B. Van Waeyenberge, A. Puzic, H. Stoll, et al. Magnetic vortex core reversal by excitation with short bursts of an alternating field[J]. *Nature*, 2006, 444: 461.
- [71] J. Raabe, C. Quitmann, C. H. Back, et al. Quantitative Analysis of Magnetic Excitations in Landau Flux-Closure Structures Using Synchrotron-Radiation Microscopy[J] *Phys. Rev. Lett.* 2005, 94: 217204.
- [72] H. Ebert, Magneto-optical effects in transition metal systems[J]. *Rep. Prog. Phys.* 1996, 59: 1665

## 攻读学位期间取得的研究成果

- [1] 李艳旭, 张桐耀, 郭志超, 何为, 陈院森, 张靖. CoFeB/MgO 铁磁薄膜超快自旋动力学的微区测量山西大学学报 2019,42(2).
- [2] Zhi Wang, Tongyao Zhang, Mei Ding, Baojuan Dong, **Yanxu Li**, et al. Electric-field control of magnetism in a few-layered van der Waals ferromagnetic semiconductor[J]. Nat. Nano. 2018, 13: 549.



## 致谢

时间如白驹过隙，转瞬即逝，三年的研究生生活就要划上句号。三年的学习和工作中令我感慨颇多。山西大学光电研究所优良的学习氛围和优越的实验环境，在这儿学得到很多专业知识以及遇到了许多良师益友。在本论文完成之际，我要向他们表示最衷心的感谢。

首先，由衷感谢彭堃堃院士和谢常德教授，他们渊博的学术造诣、一丝不苟的治学态度、高尚的职业情怀和高大的人格魅力令人敬仰，时刻激励着我努力前进。

特别感谢我的导师张靖教授在科研上的指导，他对待科研的求真精神，严谨治学的态度和敏捷的思维都深深地影响着我。几年的研究生生涯，不仅树立了严谨的科研精神，更是学到了为人处事的原则。也十分感谢陈院森教授，他带领我走进了科研的领域，并时刻精心为我指引着方向，他敏捷的思维以及新颖独到的思考问题的方式无时无刻不在感染着我。在此我向两位老师表示最诚挚的感谢与最真挚的祝福。

感谢中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室的何为老师提供的铁磁薄膜样品和中国科学院物理研究所沈阳金属所的韩拯老师提供的层状  $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$  样品。

感谢实验室的所有成员，感谢张桐耀师兄在实验中的帮助和技术方法上的讨论启发，感谢郭志超的协助，感谢他们在学习、工作、生活中对我给予的各种帮助和关心，使我在科研的道路上不畏艰难勇敢前行。感谢研究生阶段能在如此团结和积极的团队里的进行实验研究。

感谢在研究生期间所有授予我知识的老师：高等量子力学老师李志坚教授，量子光学老师张鹏飞副教授，原子物理老师王鹏军副教授，激光光谱老师秦成兵副教授，量子电子学老师徐忠孝，固体理论老师姜晓庶。你们在知识上的奉献和教育为我进入科研工作夯实了基础。

感谢机加工车间师傅们和电子车间的老师们的帮助，感谢光电所办公室各位老师的支持和热情帮助，你们的辛勤工作使我的论文顺利完成。

感谢我的父母和亲人，感谢你们对我学业和生活的支持和鼓励，特别感谢特特对我生活上的照顾，谢谢你们。

最后，感谢在山西大学 3 年研究生生涯中所有帮助过我的人们。

李艳旭

2019年3月

山西大学光电研究所

## 个人简历及联系方式

姓名：李艳旭

性别：女

籍贯：山西省大同市灵丘县

出生日期：1992年3月5日

学习经历：

硕士：2016年9月-2019年6月 山西大学光电研究所 光学

本科：2012年9月-2016年6月 山西大学物理学

## 承诺书

本人郑重声明：所呈交的学位论文，是在导师指导下独立完成的，学位论文的知识产权属于山西大学。如果今后以其他单位名义发表与在读期间学位论文相关的内容，将承担法律责任。除文中已经注明引用的文献资料外，本学位论文不包括任何其他个人或集体已经发表或撰写过的成果。

作者签名：

李艳旭

2019年5月24日

## 学位论文使用权声明

本人完全了解山西大学有关保留、使用学位论文的规定，即：学校有权保留并向国家有关机关或机构送交论文的复印件和电子文档，允许论文被查阅和借阅，可以采用影印、缩印或扫描等手段保存、汇编学位论文。同意山西大学可以用不同方式在不同媒体上发表、传播论文的全部或部分内容。

保密的学位论文在解密后遵守此协议。

作者签名：李艳旭

导师签名：张靖

2019 年 5 月 24 日



中西会通 求真至善  
登崇俊良 自强报国